T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

PARIS 6

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITE

par

Claude FREMIOT

MEMORISATION DES TEMPERATURES D'IRRADIATION PAR RETENTION DE KRYPTON 85

APPLICATION A LA DETERMINATION DE LA TEMPERATURE DE LA FACE INTERNE DES GAINES D'ELEMENTS COMBUSTIBLES DANS LES REACTEURS A EAU PRESSURISEE

Soutenue le 23 juin 1976, devant la Commission d'Examen

MM.	MATTLER	Président
	FAYARD QUERE	Examinateurs
	BLANC BAZIN	Invités

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE

PARIS 6

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITE

par

Claude FREMIOT

MEMORISATION DES TEMPERATURES D'IRRADIATION PAR RETENTION DE KRYPTON 85

APPLICATION A LA DETERMINATION DE LA TEMPERATURE DE LA FACE INTERNE DES GAINES D'ELEMENTS COMBUSTIBLES DANS LES REACTEURS A EAU PRESSURISEE

Soutenue le 23 juin 1976, devant la Commission d'Examen

MM.	MATTLER	Président
	FAYARD QUERE	Examinateurs
	BLANC BAZIN	Invités

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

A mes parents,

A ma femme,

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548114_0033

Ce travail a été effectué au Département de Technologie du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

J'adresse mes respectueux hommages à Monsieur J. MATTLER, Professeur à l'Université Pierre et Marie CURIE de Paris, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la Présidence de mon Jury.

J'exprime à Monsieur le Professeur FAYARD ma plus vive reconnaissance.

Je remercie tout particulièrement Monsieur Y. QUERE pour ses encouragements et conseils.

Je prie Monsieur J. DELAFOSSE, Chef du Service des Eléments Combustibles et Structures, qui m'a autorisé à poursuivre ce travail, de trouver ici l'expression de mes sentiments très reconnaissants.

Je remercie Messieurs G. BLANC et J. BAZIN pour leur aide et leurs critiques.

Enfin qu'il me soit permis de remercier sincèrement tous ceux qui ont contribué à ce modeste travail.

Pages

- INTRODUCTION

- CHAPITRE I - GENERALITES SUR LES REACTEURS A EAU PRESSURISEE 3

I.1 - Utilisation de l'énergie de fission nucléaire

I.2 - Résistance thermique au contact gaine-combustible 8

I.2.1 - Transfert thermique combustible-réfrigérant

I.2.2 - Définitions de quelques grandeurs 10

I.2.3 - Valeur de la résistance de la zone de transition entre le combustible et la gaine 15

- CHAPITRE II - DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA TEMPERATURE INTERIEUR GAINE 24

II.1 - Historique

II.2 - Cas général 29

II.3 - Cas des gaines d'éléments combustibles 30

- CHAPITRE III - ETUDE EXPERIMENTALE 31

III.1 - Problème de la protection biologique

III.2 - Montage expérimental 34

III.3 - Origine et détection du krypton 85 44

III.4 - Préparation des échantillons de gaine 53

- CHAPITRE IV - RESULTATS 55

IV.1 - Interprétation de la courbe de relâchement du krypton 85

IV.2 - Précision de la détermination de température 59

IV.2.1 - Correction sur la température de l'échantillon

IV.2.2 - Correction sur le temps de transfert du gaz porteur

IV.2.3 - Evaluation de l'imprécision

IV.2.4 - Influence de la vitesse de refroidissement de l'élément combustible après irradiation sur la précision de la méthode

IV.3 - Essai préliminaire : implantation à l'accélérateur 67

IV.3.1 - Buts de l'essai

IV.3.2 - Caractéristiques des implantations

IV.3.3 - Résultats

IV.4 - Mise au point de la méthode 71

IV.5 - Irradiation expérimentale de courte durée 74

IV.5.1 - Caractéristiques de l'élément expérimental

IV.5.2 - Historique de l'irradiation

IV.5.3 - Résultats

IV.6 - Irradiation expérimentale de longue durée 78

IV.6.1 - Caractéristiques des éléments combustibles

IV.6.2 - Historique de l'irradiation

IV.6.3 - Résultats

1°- Elément de référence

2°- Eléments voisins du centre du coeur du réacteur

3°- Eléments avec dépôts sur la gaine

4°- Elément localement surchauffé

IV.7 - Détermination de la température au niveau d'une rupture de gaine 88

- CHAPITRE V - DISCUSSION DES RESULTATS 91

V.1 - Modèle de rétention et de relâchement du krypton 85 par le zircaloy

V.2 - A quel moment de l'irradiation correspond la température déterminée par cette méthode ? 97

V.2.1 - Estimation du temps de mémoire de la température

V.2.2 - Evaluation expérimentale du temps de mémoire par réirradiation dans la pile TRITON

- CONCLUSION 110

- BIBLIOGRAPHIE 112

- ANNEXES 117

- LISTE DES FIGURES 130

INTRODUCTION

Le programme français de production d'électricité d'origine nucléaire repose essentiellement sur les centrales équipées de réacteurs modérés et refroidis par l'eau ordinaire sous pression. Cinquante centrales de ce type sont inscrites au plan prévisionnel d'équipement de l'Electricité de France jusqu'en 1985, dont les puissances électriques s'échelonnent de 900 à 1 200 Mégawatts ; le réacteur nucléaire associé doit développer une puissance thermique de 3 000 à 4 000 Mégawatts, compte tenu du rendement de l'ordre de 30 % de ces unités. Deux centrales prototypes ont été construites en collaboration avec la Belgique : CHOOZ (280 MWe) et TIHANGE (870 MWe), et sont actuellement couplées au réseau de distribution électrique. La mise en œuvre de réacteurs de cette capacité requiert une connaissance approfondie des performances de tous les composants et en particulier des éléments combustibles qui sont appelés à travailler dans des conditions extrêmement sévères.

La conception d'un élément combustible et sa mise au point nécessitent une étude thermique complétée par une expérimentation dans un réacteur. Pour calculer le transfert de chaleur entre le combustible et le fluide caloporteur, il faut connaître la température en divers points de l'élément combustible ; en certains de ces points la température peut être mesurée par thermocouples, par exemple à la surface externe de la gaine ou au centre du combustible. Mais, à cause du fort gradient dû à la chute thermique au contact gaine-combustible, la mesure de la température de la face interne de la gaine n'est pratiquement pas réalisable. En l'absence de mesure directe, cette température peut être calculée pour les éléments combustibles expérimentaux avec une précision acceptable, mais demeure très imprécise pour les éléments industriels irradiés dans un réacteur de puissance.

La détermination de la température de face interne de gaine par relâchement de krypton-85 est intéressante à plusieurs titres :

- Elle fournit une valeur expérimentale pouvant être comparée à la valeur calculée.

- Elle ne nécessite aucune instrumentation de l'élément combustible, ce qui est une condition "sine qua non" pour les éléments industriels.

- Elle permet d'obtenir le profil thermique de la gaine d'un élément combustible à partir des températures déterminées dans des zones où l'utilité de cette détermination était imprévisible (cas d'une surchauffe locale), puisqu'en effet la position des prélèvements d'échantillons est décidée, après irradiation, en tenant compte des résultats de divers examens préalables, tels que neutronographie, spectrométrie γ , observations visuelles et micrographies.

Ces divers avantages devraient permettre de ranger cette méthode dans les moyens de contrôle et d'expertise qui seront nécessaires à la réalisation du programme d'équipement nucléaire français.

CHAPITRE I

GÉNÉRALITÉS SUR LES RÉACTEURS A EAU PRESSURISÉE

I.1 - UTILISATION DE L'ENERGIE DE FISSION NUCLEAIRE

Les réacteurs à eau pressurisée utilisent comme combustible de l'oxyde d'uranium UO_2 faiblement enrichi en U^{235} et comme modérateur - réflecteur - réfrigérant l'eau ordinaire sous pression (pour éviter l'ébullition).

Sur la figure **1** est représenté le schéma de ces réacteurs. Le principe de fonctionnement est le suivant : l'eau du circuit primaire reste toujours liquide et par une circulation forcée elle traverse le coeur du réacteur où elle s'échauffe et un échangeur de chaleur où elle cède ses calories à un circuit secondaire.

La vapeur d'eau formée dans l'échangeur alimente des turbines haute et basse pression ; cette partie de la centrale est assez identique à celle des centrales thermiques au fuel.

Tranche type PWR (eau pressurisée)

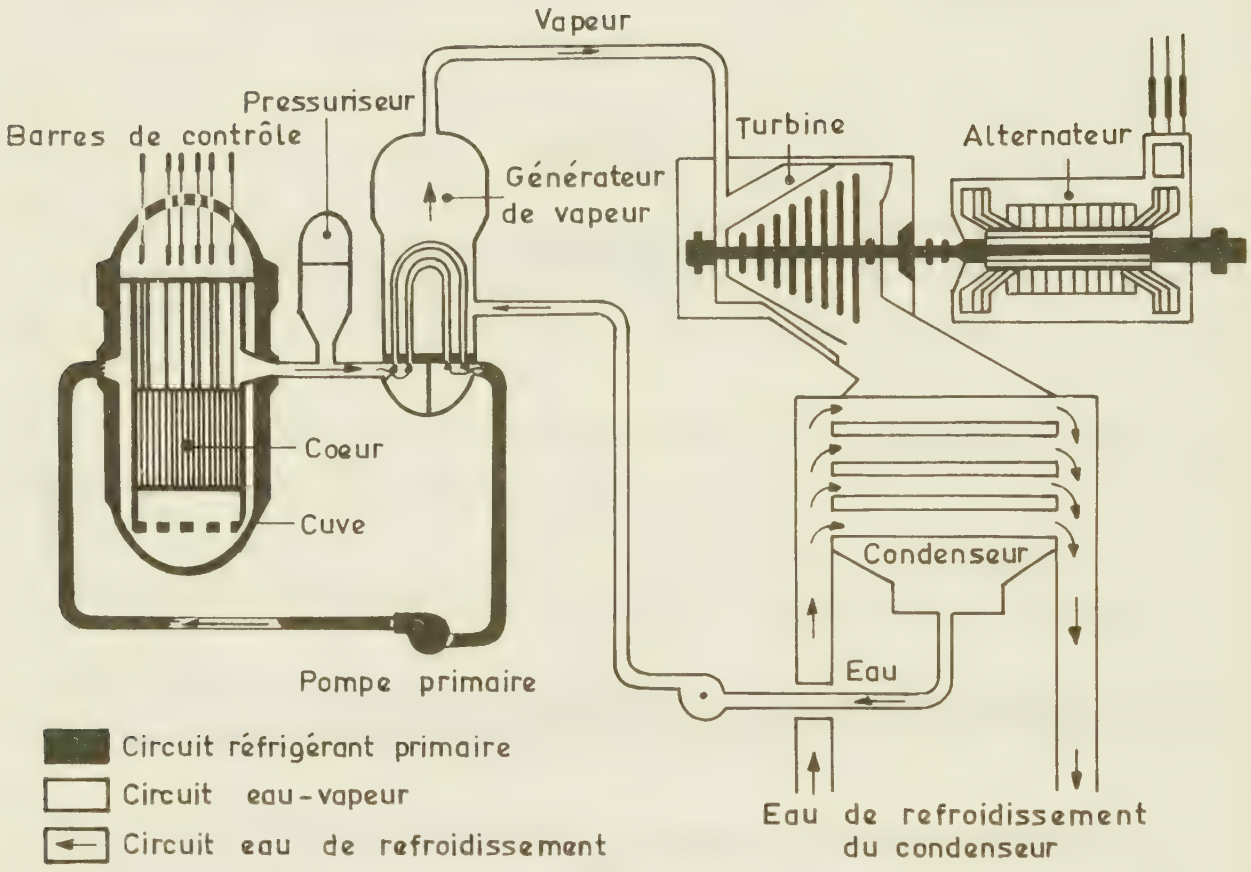


SCHÉMA DE PRINCIPE DES RÉACTEURS A EAU PRESSURISÉE

FIG. 1

Dans le coeur du réacteur l'énergie est principalement produite au sein du combustible par fission nucléaire. Chaque fission engendre une quantité d'énergie qui apparaît sous plusieurs formes :

- énergie des neutrons issus de la fission,
- énergie cinétique des fragments de fission,
- énergie des particules β transférée au milieu très proche de l'atome fissionné,
- énergie des photons γ émis au cours de la fission, à la suite des désintégrations des produits de fission ou consécutives à des captures neutroniques dans le combustible ou dans des structures du réacteur.

La fission totale d'un kilogramme de ^{235}U produit [1] :

989,2 g de produits de fission
10 g de neutrons
0,1 g de photons γ
0,7 g d'énergie cinétique (calculée suivant la relation d'Einstein $E = mC^2$)

Dans les réacteurs utilisant l'uranium 235 comme combustible, le schéma de la réaction nucléaire est le suivant :

Un atome ^{235}U capture un neutron thermique et donne $^{236}U^*$ excité (environ 5 MeV) qui subit alors la fission :

$$^{235}_{92}U + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{236}_{92}U^* \longrightarrow ^{A}_{Z}PF_1 + ^{233-A}_{92-Z}PF_2 + 3\,^{1}_{0}n + EF$$

qui peut encore s'écrire :

$$^{235}_{92}U \longrightarrow ^{A}_{Z}PF_1 + ^{233-A}_{92-Z}PF_2 + 2\,^{1}_{0}n + EF$$

où PF_1 et PF_2 sont les "produits de fission" formés et EF l'énergie libérée par la réaction (1 fission),

$EF \simeq 200$ MeV/fission $\simeq 3{,}2.10^{-11}$ Joule/fission. [29]

La plupart des fragments de fission de l'uranium 235 par les neutrons lents se situent entre les éléments ^{72}Ge et ^{158}Gd. La fission peut s'effectuer de 40 façons différentes, la loi de probabilité des différentes fissions est représentée sur la figure **2**

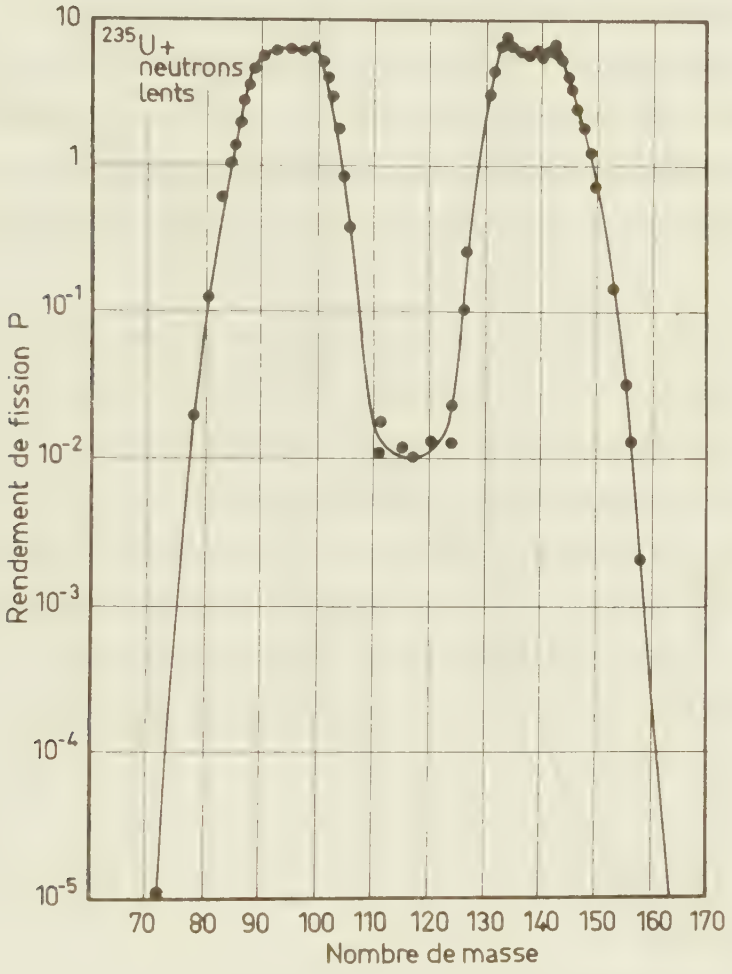
Cette répartition de probabilité de formation permet de classer les fragments de fission en deux groupes : les lourds ($130 < A < 160$) et les légers ($80 < A < 110$).

Le tableau suivant [**2**] regroupe les énergies totales libérées par la fission de ^{235}U, ^{238}U, ^{239}Pu et ^{241}Pu (énergie exprimée en MeV).

Nature de l'énergie	^{235}U		^{233}U		^{239}Pu		^{241}Pu	
		±		±		±		±
Fragments de fission	166,2	1,3	166,9	1,3	172,8	1,9	172,2	2,2
Particules β	7,0	0,3	8,9	0,6	6,1	0,6	7,4	0,6
Neutrons incidents	0		3,1		0		0	
γ initial	8,0	0,8	7,5	1,3	7,7	1,4	7,6	1,4
γ émis avec β	7,2	1,1	8,4	1,6	6,1	1,3	7,4	1,5
Neutrons émis	4,8	0,1	5,5	0,1	5,9	0,1	5,9	0,1
Energie totale (1 fission)	202,8	0,1	206,0	0,3	207,2	0,3	210,7	0,3

Cette énergie de fission récupérée par le milieu environnant se transforme principalement en chaleur. Selon que les neutrons sont utilisés à l'état rapide ou après ralentissement (thermalisation), les réacteurs sont dits "rapides" ou "thermiques". A l'état "thermique" les neutrons ont des vitesses de diffusion du même ordre de grandeur que l'agitation thermique, d'où leur appellation.

Dans les réacteurs thermiques, dont il est exclusivement question dans cette étude, les neutrons de fission qui entretiennent la réaction en chaîne sont ralentis jusqu'au niveau thermique par chocs élastiques dans un modérateur (eau ordinaire).



LOI DE PROBABILITE DES DIFFERENTES FISSIONS DE L'URANIUM 235. d'après [3]

FIG. 2

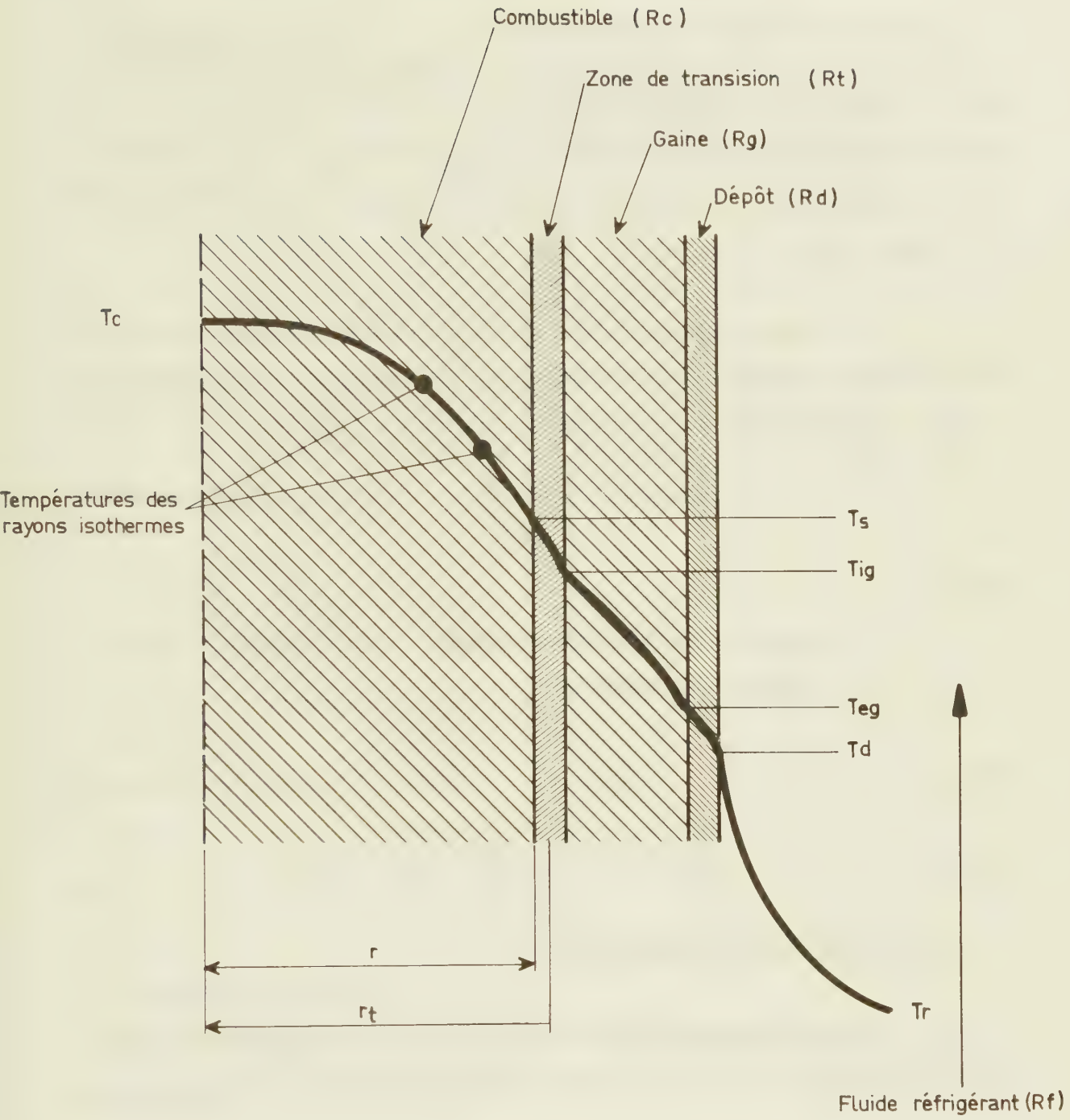
1.2 - RESISTANCE THERMIQUE AU CONTACT GAINE-COMBUSTIBLE

Le matériau fissile utilisé comme combustible ne peut être en contact direct avec le fluide caloporteur ; pour des raisons de corrosion et de contamination, il faut isoler ce matériau très radioactif par une gaine étanche. Ce gainage du combustible a donc pour but de le protéger chimiquement vis-à-vis du fluide de refroidissement et d'empêcher le dégagement des produits de fission hors de l'élément combustible. Il doit en outre avoir une section efficace d'absorption faible pour les neutrons thermiques, pour cette raison les alliages de zirconium sont actuellement les plus utilisés pour la fabrication des gaines de réacteurs à eau pressurisée.

Cette gaine affecte les échanges thermiques entre le combustible générateur de chaleur et le fluide caloporteur qui transmet cette chaleur au circuit primaire d'un échangeur. Chaque type de gainage entraîne un certain nombre de problèmes d'échanges thermiques, qui ne peuvent être calculés avec une bonne approximation par application des formules classiques d'échange de chaleur et de dynamique des fluides. Il est le plus souvent indispensable de réaliser des essais, hors pile et en pile, pour déterminer les propriétés thermiques de l'élément combustible et du fluide caloporteur. En effet, certains problèmes thermiques sont spécifiques aux réacteurs nucléaires, par exemple, si l'évacuation de la chaleur dégagée dans le combustible, par suite de réactions nucléaires, est insuffisante, la température peut croître jusqu'à fusion de tout ou partie des éléments combustibles et entraîner la destruction de ceux-ci.

1.2.1 - Transfert thermique combustible-réfrigérant

Dans le cas des réacteurs refroidis à l'eau ordinaire, on peut énumérer cinq résistances thermiques entre le centre du combustible et le fluide caloporteur (figure 3)



PROFIL DE TEMPÉRATURE DANS DES ÉLÉMENTS COMBUSTIBLES CYLINDRIQUES. d'après [4]

FIG. 3

1°- La résistance thermique du combustible (R_c).

2°- La résistance de la zone de transition entre le combustible et la gaine (R_t).

3°- La résistance thermique de la gaine (R_g).

4°- La résistance due aux éventuels dépôts sur la gaine (R_d).

5°- La résistance due au coefficient d'échange par convection du fluide de refroidissement (R_f).

On admet généralement que dans le combustible nucléaire, le transfert de chaleur par conduction longitudinale est nul, par conséquent la quantité de chaleur (C) dégagée par le combustible et transmise au réfrigérant est :

$$C = \frac{T_c - T_r}{\Sigma R}$$

avec

T_c : température centrale du combustible

T_r : température du réfrigérant

soit :

$$C = \frac{T_c - T_r}{R_c + R_t + R_g + R_d + R_f}$$

1.2.2 - Définitions de quelques grandeurs

Dans l'exposé succinct sur la résistance de la zone de transition UO_2-gaine nous utiliserons six grandeurs dont les définitions sont les suivantes :

1°- La puissance spécifique d'un combustible

La puissance spécifique Q est la puissance calorifique dissipée par l'unité de volume du combustible. Pratiquement Q est exprimé en W/cm^3

2°- La puissance linéïque

La puissance linéïque q est la puissance dissipée par l'unité de longueur du combustible. Pour les combustibles cylindriques dont il est exclusivement question ici, q est relié à Q par

$$q = Q \pi r^2$$

Pratiquement q est exprimée en W/cm.

3°- La densité de flux calorifique superficiel

C'est la puissance calorifique P émise par la surface latérale unitaire (SL) d'un cylindre de combustible. Elle s'exprime pratiquement en W/cm^2.

En effet : $SL = 2\pi r l = 1$

le volume du cylindre de rayon r correspondant est :

$$V = \pi r^2 l$$

la puissance calorifique $P = Q \times V = Q \pi r^2 l$

d'où $$\Phi = \frac{P}{SL} = \frac{Q \pi r^2 l}{2 \pi r l} = \frac{Q r}{2}$$

4°- La combustion massique

La combustion massique exprime l'énergie totale produite par l'unité de masse de combustible (M) pendant le temps (t) :

$$C_M = \frac{Q \cdot t}{M}$$

Pratiquement on l'exprime en Mégawatts jour par tonne d'Uranium ou d'UO_2 (MWj/t d'U ou d'UO_2).

5°- Le taux de combustion

Le taux de combustion représente le nombre d'atome d'U-235 fissionnés rapporté au nombre d'atomes d'U-235 initial ; selon cette définition on l'exprime en % FIFA (Fraction of Initial Fissils Atoms). Le Tableau I donne l'équivalence entre le nombre de fissions, la combustion massique et le taux de combustion, en prenant pour l'énergie de fission 200 MeV/fission.

6°- L'intégrale de conductivité dans l'UO_2

Dans un barreau cylindrique d'UO_2, l'équation de la chaleur s'écrit :

$$q = - \lambda \cdot S_L \cdot \frac{dT}{dr}$$

λ est la conductivité de l'UO_2, dont la valeur varie avec la température (figure **4**)

S_L la surface latérale du cylindre de longueur unitaire, $S_L = 2 \pi r l$, avec $l = 1$ puisque q est la puissance rapportée à l'unité de longueur.

Par ailleurs, dans la définition de la puissance linéïque nous avons écrit :

$$q = Q \cdot \pi \cdot r^2$$

d'où

$$Q \cdot \pi \cdot r^2 = - \lambda \, 2 \cdot \pi \cdot r \cdot \frac{dT}{dr}$$

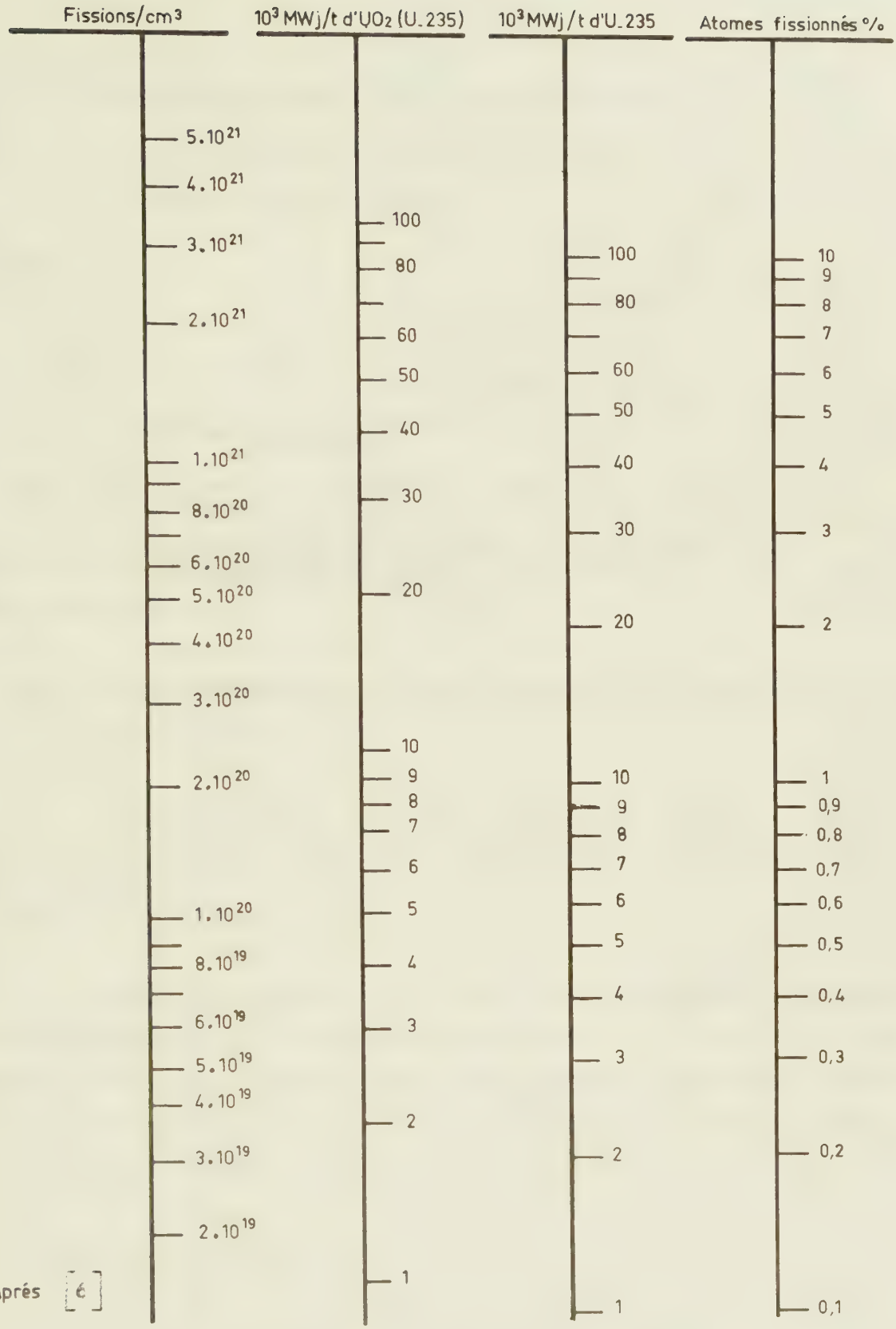
ce qui conduit à :

$$dT = - \frac{Q}{2 \lambda} \cdot r \cdot dr$$

soit

$$I_T = \int_{T_o}^{T} \lambda \, dT$$

T_o est une température de référence (sur la courbe figure **5** $T_o = 300°C$).

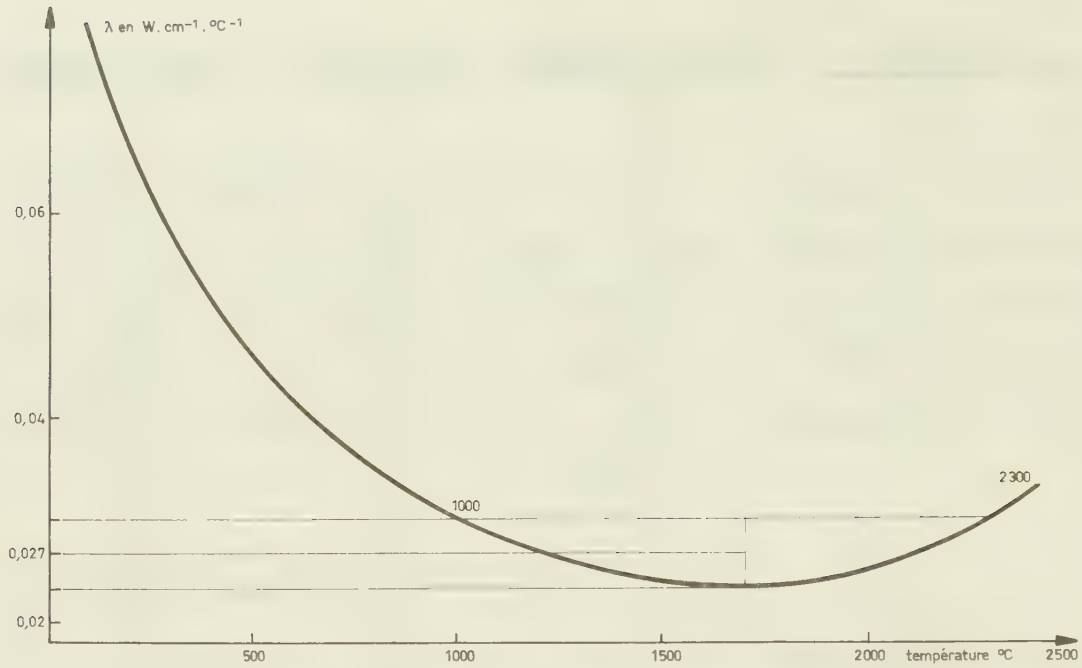


D'aprés [é]

TABLE DE CONVERSION D'UNITÉS DE COMBUSTION NUCLÉAIRE

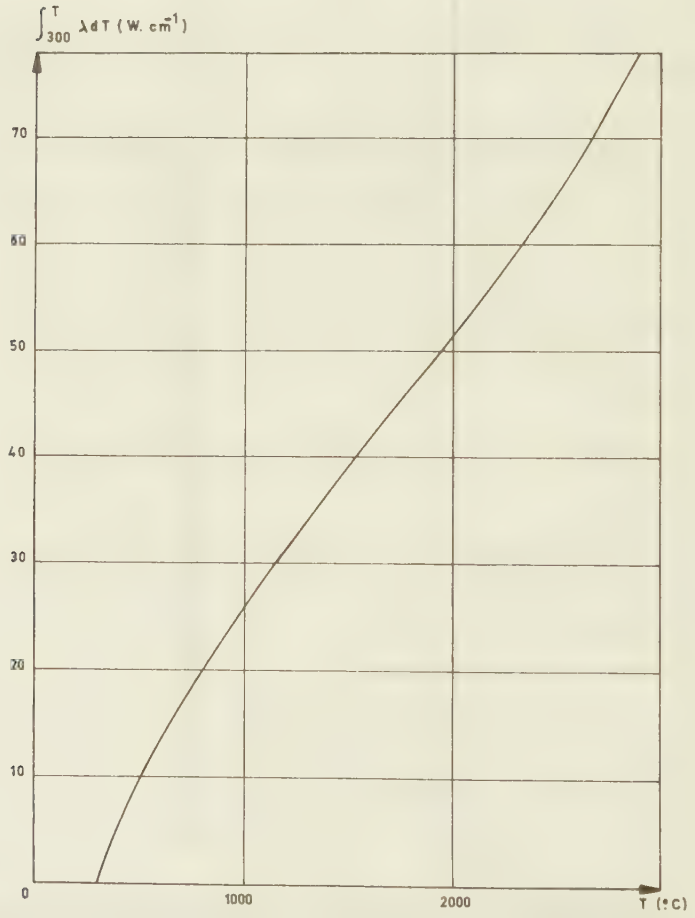
(200 MeV / fission)

TABLEAU I



VARIATION DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE DE L'UO_2
EN FONCTION DE LA TEMPERATURE D'APRES [5]

FIG. 4



INTEGRALE DE CONDUCTIVITE DE L'UO_2
(UO_2 à 96,4 °/o densité théorique) d'après [7]

FIG. 5

Ainsi définie, l'intégrale de conductivité ne dépend que :

- de la géométrie de l'élément combustible
- et de la puissance dégagée

En effet :

$$I_T = \int_{300}^{T_c} \lambda \, dT = \frac{Q \cdot r^2}{4} = \frac{q}{4\pi}$$

T_c est la température centrale du barreau d'UO_2.

Cette intégrale permet de calculer la température d'un rayon quelconque (r) dans l'UO_2, et en particulier la température de surface de l'UO_2 (T_s), comme nous le verrons plus loin.

I.2.3 - Valeur de la résistance de la zone de transition entre le combustible et la gaine (R_t)

Parmi les cinq résistances thermiques énumérées au début de ce paragraphe, celle qui est concernée par ce travail est la résistance thermique existant entre le combustible et la gaine (R_t).

Nous allons montrer qu'il existe deux expressions pour calculer sa valeur, dont la plus pratique exige la connaissance de la température de la face interne de la gaine (T_{ig}). Cette dernière pouvant être calculée selon deux variantes, dont l'une et l'autre ont une précision médiocre, d'où l'intérêt de la détermination expérimentale que nous proposons ensuite.

A - Première expression de R_t

Pour un élément combustible cylindrique cette résistance a pour expression :

$$R_t = \frac{\text{Log } \frac{r_t}{r_s}}{2\pi \lambda_t}$$

avec

r_t rayon moyen de la zone de transition

r_s rayon du combustible

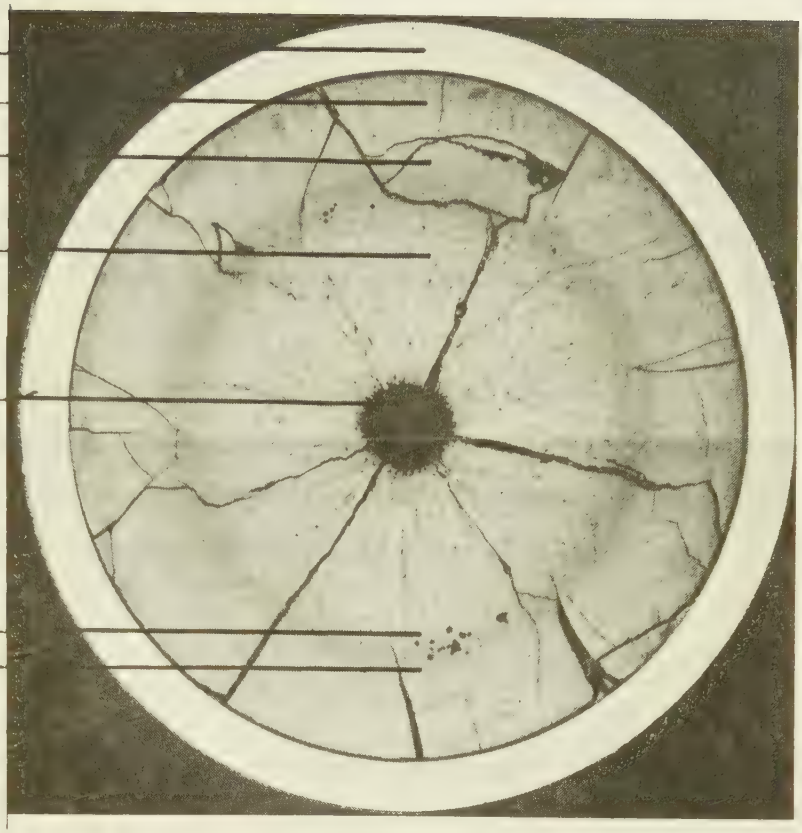
λ_t conductivité thermique de cette zone.

La valeur de λ_t est généralement très mal connue, car la nature de la zone de transition évolue au cours de l'irradiation :

- Au début de l'irradiation elle est constituée par une lame de gaz créée par le jeu mécanique entre le combustible et la gaine, dont l'épaisseur modifie considérablement la valeur de R_t . En effet, si l'UO_2 est en compression (frettage par la gaine) les valeurs de R_t varient de 0,5 à 1°C.W^{-1}.cm^2 [8] . Par contre, si l'UO_2 est libre de se dilater (absence de frettage) et si le jeu initial est à peu près comblé par le mouvement du combustible, la résistance thermique paraît s'établir à une valeur plus élevée, comprise entre 1 et 2°C.W^{-1}.cm^2 [7] . La variation du coefficient de transfert ($h = 1 / R_t$) entre l'UO_2 et le Zircaloy 2 en fonction de la pression de frettage, est donnée par ROS et STOUTE [9].

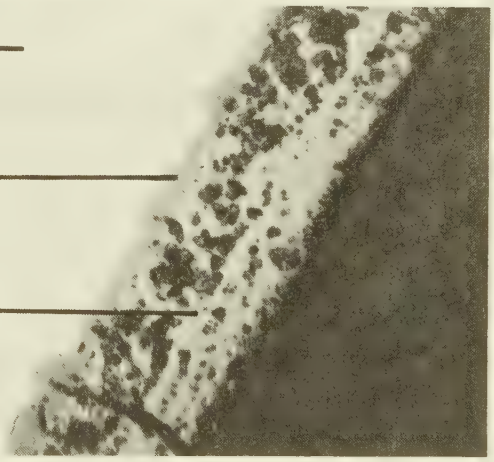
- Au cours de l'irradiation, diverses couches peuvent s'interposer entre l'UO_2 et la gaine. Plus précisément au-delà d'une combustion massique de 15 000 MWj/t d'U, les examens micrographiques montrent une couche plus ou moins épaisse constituée d'oxyde de zirconium (ZrO_2) et d'une couche de réaction UO_2-gaine, contenant des produits de fission (Cs , Rb , I , Te , Ba , Pd) qui migrent vers la périphérie du combustible (figure 6). Une telle couche peut atteindre, selon la température d'irradiation et la combustion massique, quelques dizaines de microns d'épaisseur. L'étude de l'influence d'une couche de zircone seule sur les transferts thermiques [10] montre une action très importante de celle-ci sur la conductibilité

aine en zircaloy 4
rains équiaxes normaux
rains équiaxes grossis
rains colonnaires
rou central
otherme 1750° C
otherme 1450° C



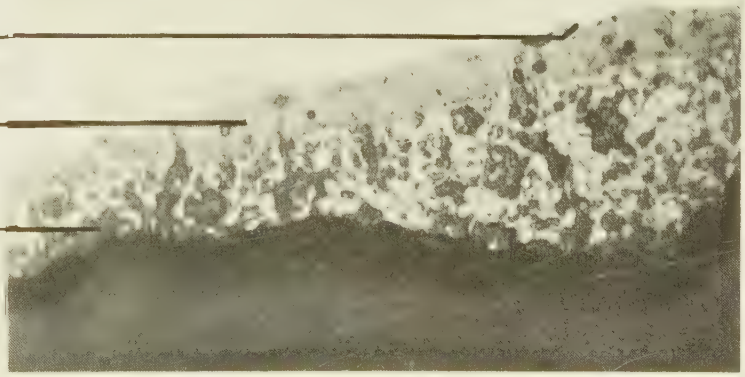
ACROGRAPHIE x 10 Fig. 6 a

aine en zircaloy 4
ouche de zircone
épôt externe



ACE EXTERNE GAINE Fig. 6 b x 400

aine en zircaloy 4
ouche de zircone
one de réaction oxyde-gaine
Accrochage d'oxyde d'uranium



ACE INTERNE GAINE Fig. 6 c x 400

FIG. 6

thermique de l'ensemble gaine + zircone (la conductivité de la zircone étant 30 fois plus faible que celle du zircaloy) comme l'indique leurs courbes de variation de conductivité en fonction de la température (figure **7**)

En conséquence, la résistance thermique R_t n'est généralement pas calculable avec une bonne précision, à cause des incertitudes sur la valeur du jeu UO_2-gaine en début d'irradiation ou sur la conductivité thermique des couches qui se forment entre l'UO_2 et la gaine en cours d'irradiation.

B - Deuxième expression de R_t

L'expression générale de la résistance thermique est :

$$R_t = \frac{\Delta T}{\Phi}$$

appliquée aux éléments combustibles, on l'écrit :

$$R_t = \frac{T_s - T_{ig}}{\Phi}$$

dans laquelle :

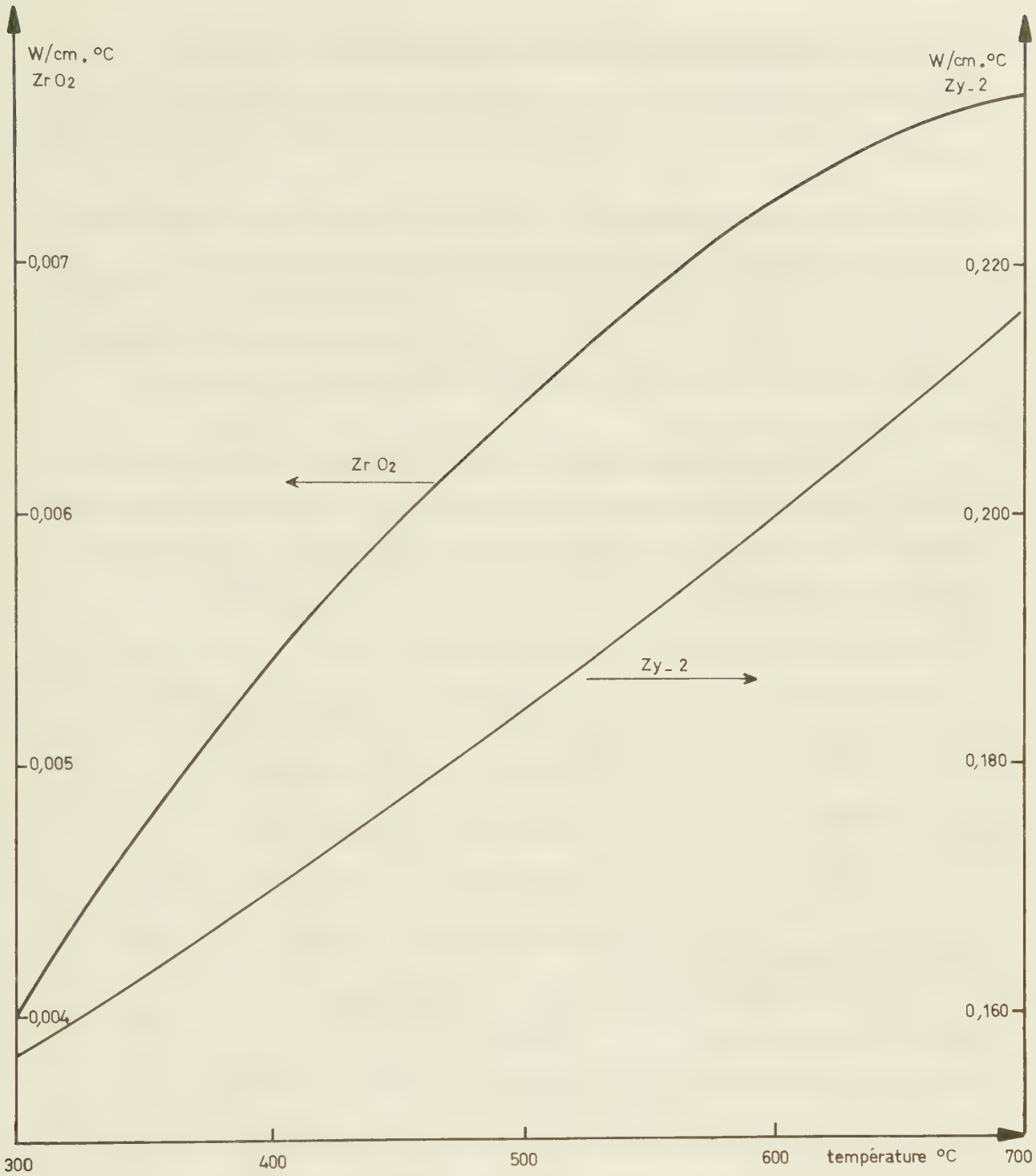
T_s est la température de surface de l'UO_2

T_{ig} est la température intérieur-gaine

Φ est la densité de flux calorifique superficiel, précédemment définie.

Sous cette forme R_t est couramment appelée " chute au contact ".

La densité de flux superficiel $\Phi = \frac{Q_r}{2}$ est une donnée de l'irradiation, il reste donc à calculer les valeurs de T_s et T_{ig} .



CONDUCTIVITÉ THERMIQUE DU Zy-2 ET DE ZrO_2 d'après [10]

FIG. 7

1°- Calcul de la température de surface de l'UO_2

Sur la figure **6 a** , on peut observer trois structures différentes de l'UO_2, à savoir :

- Une couronne externe dans laquelle les grains ont conservé leur taille de frittage,
- Une couronne intermédiaire dans laquelle ces grains ont grossi en restant équiaxes,
- Au centre une large couronne entourant le trou central, dans laquelle le grain de l'UO_2 s'est allongé dans le sens du gradient thermique (grains colonnaires).

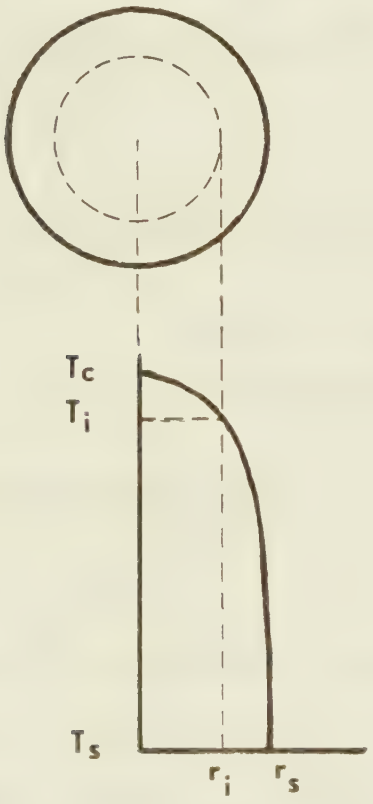
Il est donc possible de définir deux rayons isothermes pour 1 450°C et 1 750°C, à partir des limites de ces trois couronnes. Pour l'isotherme délimitant la couronne à grains colonnaires, diverses valeurs ont été publiées, le tableau suivant en regroupe quelques-unes :

Température en °C	Auteurs	Référence
1 700	J.P. STORA et all. (SER - Grenoble)	[7]
1 800	J.A. CHRISTENSEN et all. (Wadco)	[11]
1 850	G.R. HORN et all. (Handford)	[12]
1 900 par simulation thermique	J.R. MAC EWAN et all. (Canada)	[13]
1 800 T 2 200 par simulation thermique	J.J. POTTER, C.A. ELYARD (Harwell)	[14]
2 150	C.N. CRAIG (G.E.)	[15]

Remarque : La valeur actuellement admise par les utilisateurs est T_i = 1 750°C, toutefois on notera une dispersion des valeurs peu favorables à la précision du calcul de la température superficielle du combustible à partir de cette isotherme.

D'autre part, le rayon r_i de l'isotherme 1 450°C correspondant à la limite de grossissement des grains est assez mal défini également, car il n'est pas aisé de fixer une limite exacte entre deux tailles de grains sur une micrographie.

La température superficielle du combustible peut être calculée si l'on connaît : la puissance dégagée (Q ou q), la température au centre du barreau (T_c) et la température d'une isotherme (T_i).



Représentons l'isotherme définie par T_i et r_i sur une section transversale du barreau d'UO_2, et écrivons :

$$\int_{T_i}^{T_s} \lambda \, dT = \int_{T_i}^{T_c} \lambda \, dT - \int_{T_s}^{T_c} \lambda \, dT$$

soit $$I_1 = I_2 - I_3$$

La valeur de l'intégrale I_2 est donnée par la courbe (figure 5) sur laquelle sont portées les valeurs de l'intégrale de conductibilité de l'UO_2 entre 300 et 2 800°C.

Connaissant la puissance linéïque q (ou spécifique Q) on peut calculer la valeur de l'intégrale I_3, soit :

$$I_3 = \int_{T_s}^{T_c} \lambda \, dT = \frac{Q \, r_s^2}{4} = \frac{q}{4\pi}$$

finalement

$$I_1 = \int_{T_i}^{T_s} \lambda \, dT = I_2 - \frac{q}{4\pi}$$

La valeur de I_i reportée sur la courbe (figure **5**) donne la température superficielle de l'UO_2 (T_s).

Compte tenu des remarques précédentes concernant l'imprécision sur T_i ou r_i des isothermes utilisées, la température superficielle du combustible est au mieux connue à $\pm$ 100°C près, soit 15 % pour les éléments combustibles actuels.

2°- Calculs de la température intérieur-gaine (T_{ig})

a) Première variante : on connaît la température extérieur-gaine (T_{eg}) mesurée par thermocouple.

L'enregistrement de la température extérieur-gaine par thermocouple indique :

- la température maximale atteinte T_M
- la température en fin d'irradiation T_F

Ces deux températures sont corrigées en fonction de la puissance linéïque (figure **8**) et deviennent T_{M_c} T_{F_c} .

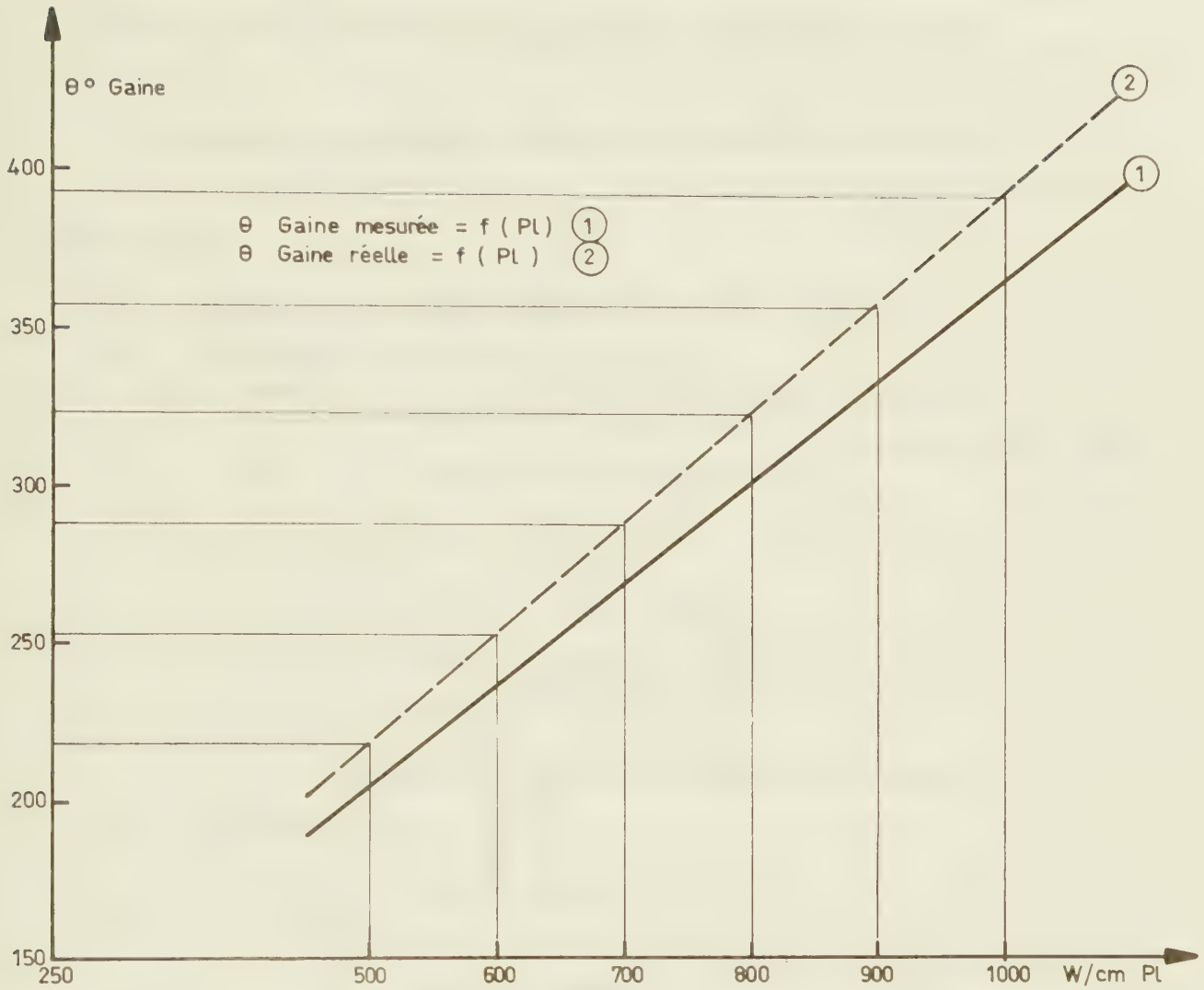
En pratique on connaît soit la puissance volumique Q, soit la puissance linéïque q qui sont reliées par :

$$Q = \frac{q}{\pi r^2}$$

La densité de flux thermique sur la gaine est :

$$\Phi = \frac{Q \cdot r}{2} = \frac{q}{2 \pi r}$$

Ce flux théorique doit être corrigé pour obtenir le flux réel (Φ R) :



ÉCARTS ENTRE TEMPÉRATURES MESURÉES ET TEMPÉRATURES RÉELLES
(Gaine en zircaloy de 0,6 mm d'epaisseur) d'après [16]

FIG. 8

$$\Phi R = \text{théorique} \times \frac{T_{F_c} - \theta}{T_{M_c} - \theta}$$

(θ étant la température minimale du fluide caloporteur).

La valeur du coefficient de conductivité thermique du zircaloy-2 en fonction de la température (figure 7) est :

$$\lambda_z = 0{,}12 + (1{,}25 \cdot 10^{-4} \cdot T_{F_c})$$

L'écart de température entre la face interne et la face externe de la gaine a pour expression :

$$\Delta T = \frac{\Phi_R \cdot e}{\lambda_z}$$

e est l'épaisseur de la gaine

λ_z la conductivité thermique du zircaloy.

La température intérieur-gaine maximale est égale à :

$$T_{ig}\,(\text{max.}) = T_{M_c} + \Delta T$$

et la température intérieur-gaine finale à :

$$T_{ig}\,(\text{finale}) = T_{F_c} + \Delta T$$

Nota : Une application de ce calcul est donnée en annexe I.

b) Deuxième variante : On calcule la température extérieur-gaine (T_{eg}) à partir de la température de l'eau de refroidissement du réacteur.

La température de l'eau au niveau de l'élément combustible est obtenue par bilan thermique entre les températures de sortie et d'entrée dans le réacteur. Pour calculer la température extérieure de la gaine, il faut tenir compte du coefficient d'échange au contact gaine-eau, qui est donné par la formule de Colburn :

$$h = \frac{\lambda_e}{D} \times 0{,}023\ Re^{0,8} \times Pr^{0,3}$$

dans laquelle :

λ_e est la conductivité thermique de l'eau

D le diamètre hydraulique égal à $D_1 - D_2$

avec D_1 diamètre de la chemise d'eau

et D_2 diamètre de l'élément combustible

Re : nombre de Reynolds $= \frac{V \rho D}{\mu}$

V vitesse d'écoulement (cm/s)

ρ masse spécifique de l'eau (g/cm^3)

D diamètre hydraulique (cm)

μ viscosité dynamique (poise)

Pr : nombre de Prandtl $= \frac{\mu C_p}{\lambda_e}$

μ viscosité dynamique (poise)

C_p chaleur spécifique de l'eau (W/g .°C)

λ_e conductivité thermique de l'eau (W/cm.°C)

La chute de température $\Delta\theta$ au contact gaine-eau est donnée par :

$$\Delta\theta = \frac{q}{\pi . d . h}$$

d : diamètre extérieur de la gaine

La température de surface de la gaine est alors :

$$T_{eg} = \theta_s = \theta_{eau} + \Delta\theta$$

Connaissant θ_s on est ramené au cas décrit paragraphe 1, il suffit d'ajouter à θ_s l'écart de température ΔT dans la gaine, soit :

$$T_{ig} = \theta_s + \Delta T$$

avec (pour mémoire) :

$$\Delta T = \frac{\Phi R \times e}{\lambda_z}$$

CHAPITRE II

DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DE LA TEMPÉRATURE INTERIEUR GAINE

II.1 - HISTORIQUE

L'utilisation du krypton 85 comme traceur universel, a fait l'objet d'un certain nombre d'études aux Etats-Unis. Les matériaux imprégnés de krypton 85 par diffusion ou par bombardement ionique sont déposés sous la marque "kryptonates" [17]

La mesure des températures de surface, à l'aide de ces kryptonates, a été développée dans le cadre du programme SST par la NASA-LEVIS [18] et la SAE [19]

Ces mesures ont porté principalement sur des pales de turbine ou des arbres en rotation à grande vitesse. Les procédés d'imprégnation préalables par du krypton 85 sont :

- bombardement de la surface par des ions de krypton 85 accélérés,
- imprégnation thermique sous pression.

Ce dernier procédé, plus pratique à mettre en oeuvre, semble être le plus utilisé.

Les gaines d'éléments combustibles étant soumises au bombardement par les fragments de fission (dont le krypton 85), SWANSON et coll. [20] ont eu l'idée d'utiliser cette imprégnation en krypton 85 pour déterminer la température d'irradiation de gaines en acier inoxydable du réacteur de DOUNREAY (filière Neutrons Rapides anglaise).

Ce travail a pour but d'étudier la possibilité d'adapter une méthode similaire aux gaines en alliages de zirconium, actuellement utilisées dans les réacteurs à eau ordinaire pressurisée.

II.2 - CAS GENERAL

La méthode la plus couramment utilisée par la NASA-LEVIS et la SAE, pour mesurer la température de surface d'une pièce, consiste à imprégner celle-ci par du krypton 85 en autoclave à 450°C sous 30 bars de pression et pendant 20 heures. Cette imprégnation étant suivie d'une trempe.

La pièce est ensuite mise en service.

Afin de retrouver sa température de service (T_s) , la pièce, après démontage, subit un recuit à température croissante au cours duquel on enregistre le début de dégagement du krypton 85.

Cette expérience est schématiquement décomposable en trois étapes :

1°- Imprégnation à température T_i ,
2°- Utilisation à température de service $T_s < T_i$ (dégagement du ^{85}Kr jusqu'à T_s),
3°- Recuit jusqu'à température supérieure à T_s (début du dégagement de krypton 85 à la température T_s).

II.3 - CAS DES GAINES D'ELEMENTS COMBUSTIBLES

L'imprégnation préalable des gaines par du krypton 85 n'est pas utilisable parce que le krypton 85 disparaît rapidement au cours de l'irradiation [20] . Le bombardement de la surface par des particules de haute énergie (neutrons & fragments de fission) engendre une très grande mobilité des atomes piégés superficiellement. Si les atomes expulsés ne sont pas remplacés par d'autres de même nature, la teneur en éléments correspondant diminue. Par contre, si des atomes de cet élément existent en quantité suffisante au voisinage de la surface, il s'établit une concentration d'équilibre entre les atomes incidents et les atomes expulsés. Un tel équilibre est possible avec le krypton 85 produit par la fission de l'^{235}U et du ^{239}Pu, d'autant mieux que la concentration en krypton 85 est plus élevée à la périphérie du combustible où il est en contact avec la gaine [21].

En somme, durant l'irradiation d'une gaine, l'imprégnation et le dégagement thermique se produisent simultanément.

Si en fin d'irradiation le refroidissement est suffisamment rapide, la température de service sera mémorisée par la gaine.

Pour retrouver cette température, la méthode consiste à recuire la gaine lentement et à déceler l'apparition du début de dégagement du krypton 85 qui se produit simultanément avec le recuit des défauts créés par irradiation.

Dans ce cas, le schéma précédent se réduit à deux étapes (les étapes 1 et 2 étant confondues) :

1°- Imprégnation et dégagement simultanés durant l'irradiation à la température de service, soit $T_s = T_i$.

2°- Recuit jusqu'à température supérieure à T_s (dégagement du ^{85}Kr à partir de T_s).

CHAPITRE III

ETUDE EXPÉRIMENTALE

Le dispositif expérimental que nous avons réalisé, est implanté dans une cellule du Laboratoire de Haute Activité du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

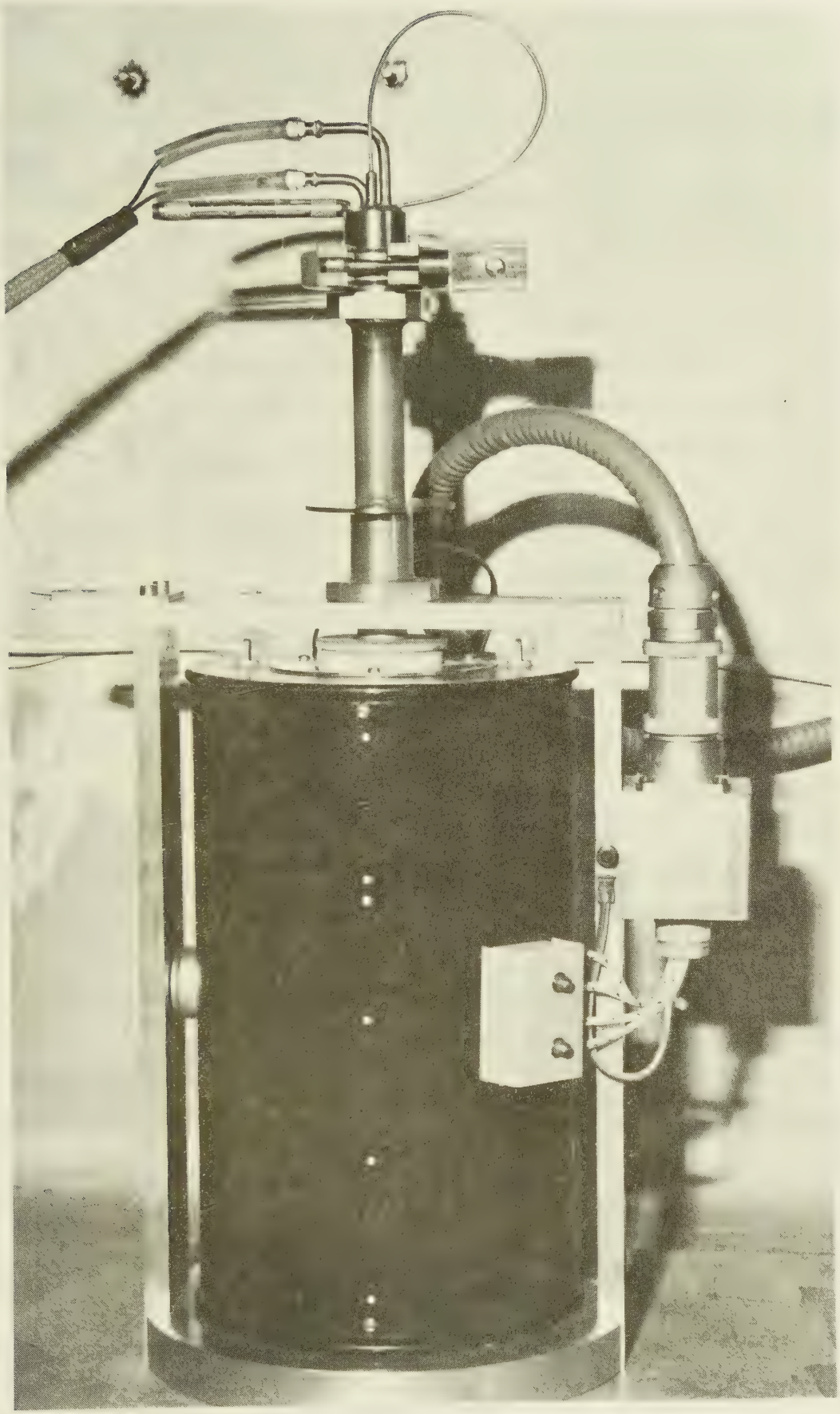
III.1 - PROBLEME DE LA PROTECTION BIOLOGIQUE

La radioactivité des échantillons de gaine utilisés pour cette manipulation nécessite deux types de protection, l'une contre la contamination radioactive, l'autre contre les rayonnements ionisants.

La protection contre la contamination radioactive est obtenue par confinement de l'atmosphère entourant le four dans lequel s'effectuent les recuits ; cette atmosphère est renouvelée en permanence par une ventilation qui crée une dépression d'une dizaine de millimètres d'eau. Cette disposition permet un rejet des gaz radioactifs dans le circuit de ventilation prévu à cet effet.

La protection contre les rayonnements ionisants est réalisée par une cellule blindée, dont les parois ont une épaisseur partout équivalente à 150 mm de plomb, c'est dire, par exemple, que la fenêtre d'observation en verre au plomb a une épaisseur de 450 mm. Cette protection, outre son rôle biologique, soustrait les appareils de détection à l'irradiation due aux échantillons.

Le four dans lequel ont lieu les recuits d'échantillon de gaine se trouve donc implanté dans un caisson ventilé et dépressurisé (figure 9) situé à l'intérieur de la cellule blindée. Les opérations de chargement et de déchargement du four sont effectuées à distance à l'aide de télémanipulateurs à bras maître-esclave.



FOUR DE RECUIT

FIG. 9

III.2 - MONTAGE EXPERIMENTAL

Nous avons vu que la détermination expérimentale de la température intérieure de gaine consiste à :

- chauffer lentement un échantillon de gaine,
- récupérer les produits de fission qui s'en dégagent,
- séparer le krypton 85,
- afin de le détecter par son rayonnement **ß** .

Le montage que nous décrivons permet la réalisation de ces opérations à l'aide des sous-ensembles suivants :

a) un four à vitesse de montée en température programmée,
b) un circuit de récupération et de séparation des produits de fission,
c) une chaîne de comptage.

Hormis le four qui se trouve à l'intérieur du caisson de la cellule blindée, tous les appareils nécessaires au fonctionnement de cette manipulation sont implantés à proximité immédiate de la cellule.

Sur le schéma de principe (figure **10**) on a différencié les trois sous-ensembles par des traits d'épaisseurs différentes :

A - La partie thermique (trait moyen)

Elle est constituée par :

a) Un four programmé

Ce four est du type tubulaire vertical à trois enroulements séparés permettant d'obtenir une zone de température homogène de 100 mm de longueur par compensation de l'effet d'extrémité.

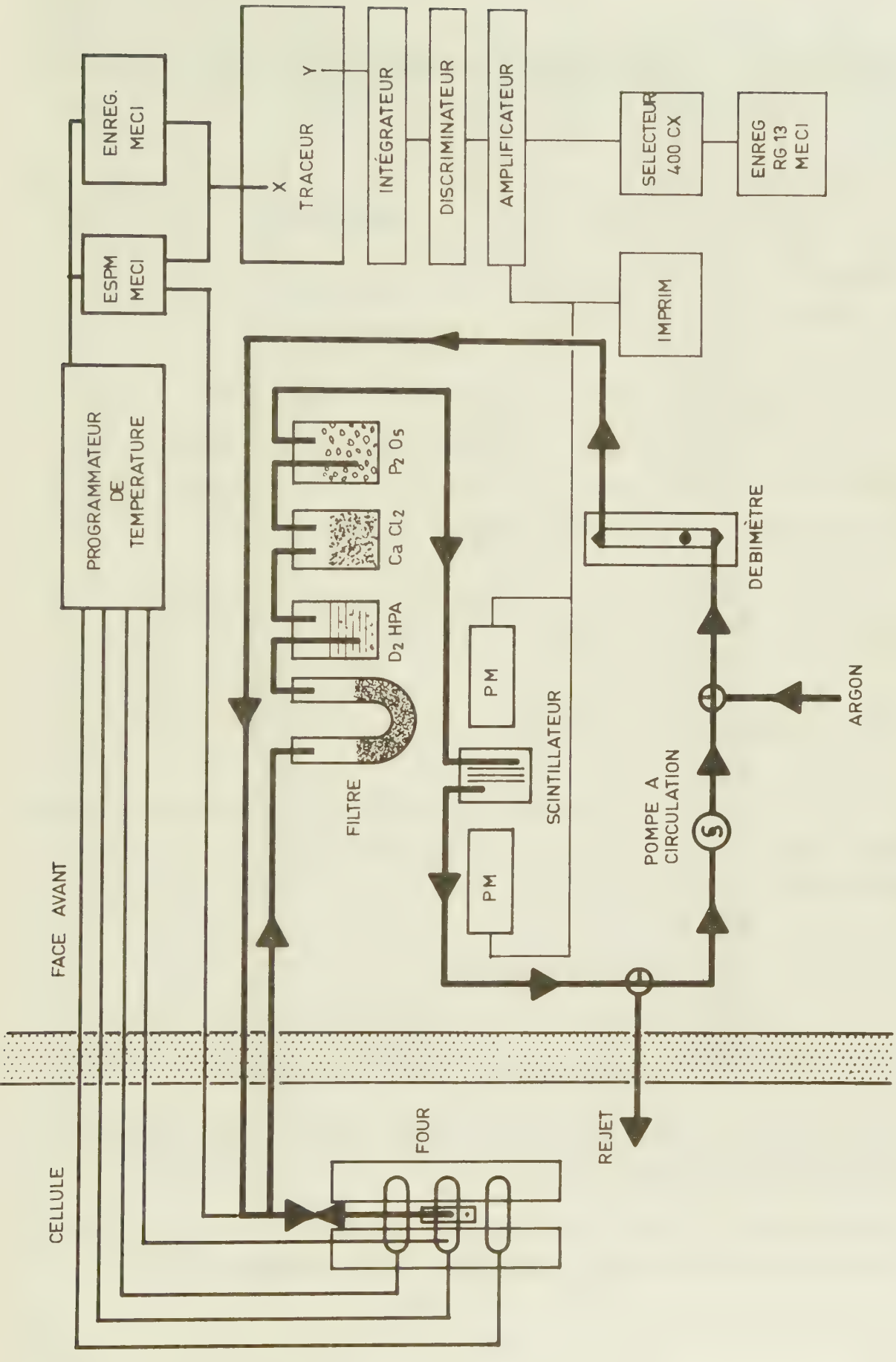


SCHÉMA DE PRINCIPE DE L'INSTALLATION

FIG. 10

Le moufle peut être balayé par un courant ascendant d'argon afin d'y créer une atmosphère inerte autour de l'enceinte porte-échantillon.

Un programmateur assure une montée linéaire de la température en fonction du temps. Il est piloté par un thermocouple de régulation se trouvant au contact des enroulements chauffants afin de diminuer l'inertie thermique, donc le temps de réponse de la programmation.

b) Un dispositif de mesure de la température échantillon

La force électromotrice fournie par le thermocouple de mesure dont la soudure chaude est située au voisinage de l'échantillon, alimente la voie X d'un traceur X-Y, dont la voie Y enregistre l'activité ß du gaz dégagé.

Un contrôle rigoureux de cette température enregistrée est effectué avec un millivoltmètre potentiométrique de précision 0,01 mV, soit 0,2°C.

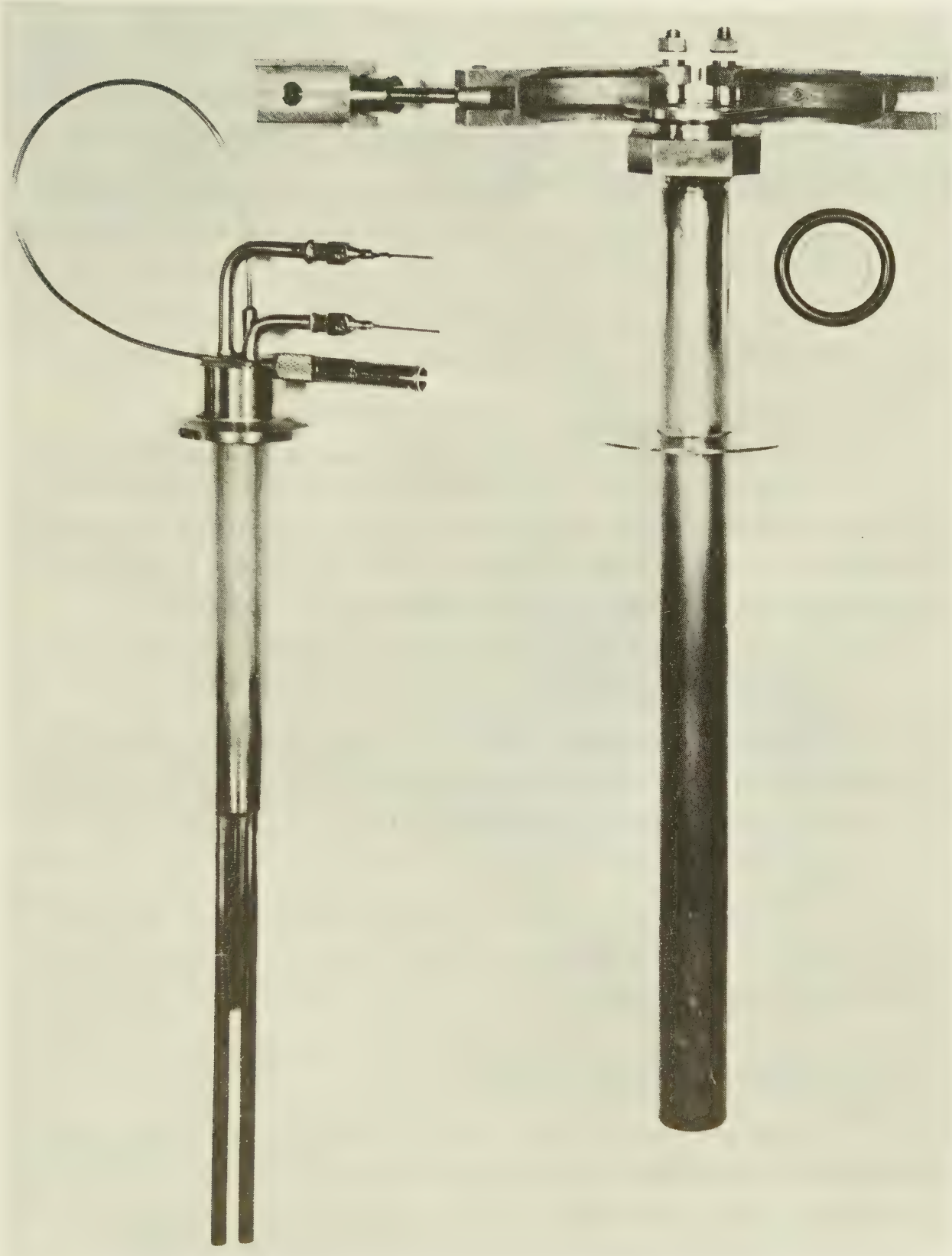
B - Le circuit gazeux (figure 10) (trait fort)

Le krypton 85 qui se dégage de l'échantillon de gaine pendant le chauffage est entraîné dans le circuit de comptage par un gaz porteur inerte (argon). Ce circuit fermé comprend :

a) Une enceinte porte-échantillons

Cette enceinte (figure 11) est réalisée en acier inoxydable ; elle est composée de deux parties :

- le conteneur constitué d'un simple tube borgne, surmonté par une bride normalisée (avec son collier de serrage),
- la bride supérieure traversée par trois tubes dont deux assurent l'arrivée et la sortie du gaz porteur, et le troisième le passage étanche du thermocouple de mesure.



ENCEINTE PORTE-ECHANTILLONS DEMONTEE MONTRANT
LE THERMOCOUPLE DE MESURE

FIG. 11

L'étanchéité entre ces deux parties est obtenue par une bague joint torique standard, renouvelée fréquemment, située en partie froide et serrée entre les deux brides normalisées par le collier de serrage.

b) Un système de filtration

Ce système élimine les produits de fission indésirables susceptibles de perturber le comptage du krypton 85. Il comprend :

- un filtre à poussières

Le gaz sortant de l'enceinte porte-échantillon est filtré à chaque cycle sur du coton hydrophyle contenu dans un tube en U. Ce filtre est changé fréquemment, un contrôle par spectrométrie γ a montré qu'il retient les poussières et fixe par condensation une partie des produits de fission volatils (tels que ^{134}Cs et ^{137}Cs).

- une série de barbotteurs

Pour parfaire l'élimination des produits de fission, le gaz barbotte dans un flacon contenant de l'acide Di-éthyl-hexyl-orthophosphorique (D_2HPA) puis est séché par passage sur du chlorure de calcium et de l'anhydride phosphorique.

L'efficacité de ces barbotteurs a été testée par spectrométrie γ lors de la mise au point de la mesure, puis, plus récemment, avec des échantillons très riches en produits de fission (cf. III.3).

c) Une cuve de détection transparente

Située dans un compartiment étanche à la lumière du spectromètre, cette cuve contient le scintillateur. Celui-ci est excité par contact direct avec le krypton 85 ; les parois de la cellule sont transparentes afin de laisser passer sans absorption les photons émis par le scintillateur. Elle est réalisée en verre spécial à faible teneur en potassium 40, pour diminuer le bruit de fond de l'ensemble scintillateur - spectromètre.

d) Une pompe à circulation et un débitmètre

C'est une pompe péristaltique à galets ; l'ajustement du débit se fait par variation de la vitesse du moteur d'entraînement. Un débitmètre étalonné pour l'argon permet de maintenir le débit de 3 l/h. Pour ce débit la durée du cycle du gaz porteur est de deux minutes.

e) Une alimentation et un rejet des gaz

Le circuit est mis sous argon en début de mesure, à la fin de la mesure les gaz actifs du circuit de mesure sont rejetés dans le caisson ventilé. **(Fig 10)**

Remarque sur le volume du circuit gazeux

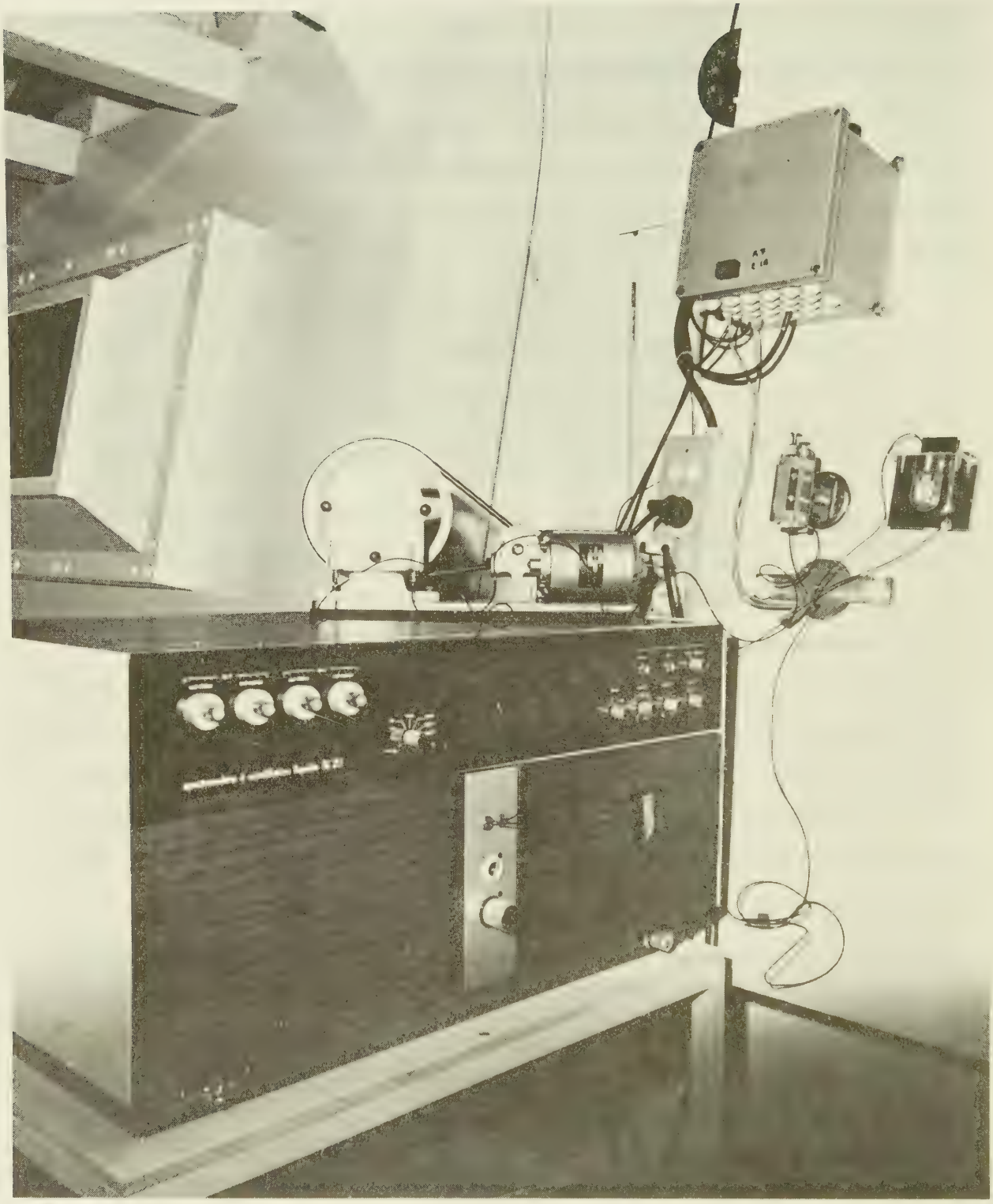
Le krypton 85 est compté en continu dans le gaz porteur qui s'enrichit à chaque passage dans l'enceinte porte-échantillon. Il est donc intéressant de réduire le volume du circuit afin que le krypton 85 ne soit pas trop dilué, ce qui amènerait une baisse de sensibilité pour sa détection. Cette raison a conduit à réaliser le circuit gazeux avec du tube téflon de 1 mm de diamètre intérieur et les raccords avec des aiguilles hypodermiques ; l'étanchéité est obtenue en noyant les raccords dans une résine. Par ces dispositions le volume du circuit ne dépasse pas 300 cm^3 pour une longueur de 10 mètres.

C - La chaîne de comptage (trait fin) (figure 10)

La chaîne de comptage est de conception classique. Notre effort a porté sur le mode de détection pour l'obtention d'un rapport signal/bruit élevé. Cette chaîne comporte trois parties :

a) L'électronique de mesure

La détection **ß** est effectuée dans un spectromètre à scintillation (figure 12) dont le compartiment étanche à la lumière reçoit la cuve de détection transpa-



SPECTROMETRE A SCINTILLATION

FIG. 12

-rente contenant le scintillateur. Ce compartiment est limité par les photocathodes des deux photomultiplicateurs diamétralement opposés et par deux réflecteurs. Le schéma de principe du spectromètre est représenté figure **13** . Le circuit de coïncidence élimine les impulsions parasites n'affectant qu'un des photomultiplicateurs (cas du bruit de fond thermique). La probabilité de coïncidence aléatoire est très faible puisque le temps de résolution de ce circuit est de l'ordre de 10 nanosecondes. Les impulsions coïncidentes délivrées par le spectromètre sont traitées par un sélecteur d'amplitude mono-canal puis intégrées dans la bande d'énergie 30 KeV - 3 MeV.

b) La sortie des résultats

Les résultats sortent sous deux formes :

- analogique : la tension de sortie de l'intégrateur alimente la voie Y du traceur. La courbe activité-température est tracée pour chaque expérience et peut servir à la détermination de la température de gaine.
- numérique : en sortie du spectromètre une imprimante fournit le taux de comptage sous forme numérique. Il est ainsi possible de retracer la courbe activité-température quand le tracé direct n'est pas utilisable.

c) Contrôle des énergies

Un sélecteur multicanaux (400 canaux) délivre un spectre des émetteurs β présents dans le circuit gazeux et pouvant interférer avec le krypton 85 (0,670 MeV). Le plus gênant est le ^{134}Cs parce que l'énergie de son rayonnement β est de 0,662 MeV et ne peut de ce fait être discriminé électroniquement (résolution du spectromètre de l'ordre de 40 KeV). Il convient donc de l'éliminer chimiquement avant le comptage, c'est le rôle de la série de barbotteurs précédemment décrits.

Les autres produits de fission sont discriminés électroniquement, le comptage s'effectuant au travers d'une "fenêtre" de 100 mV centrée sur le pic du krypton 85 (figure **17**).

Les spectres β obtenus en cours de recuit sont comparés au spectre du krypton 85 pur, afin de contrôler la validité du comptage.

Une vue partielle de la chaîne de comptage est donnée par la figure 14 .

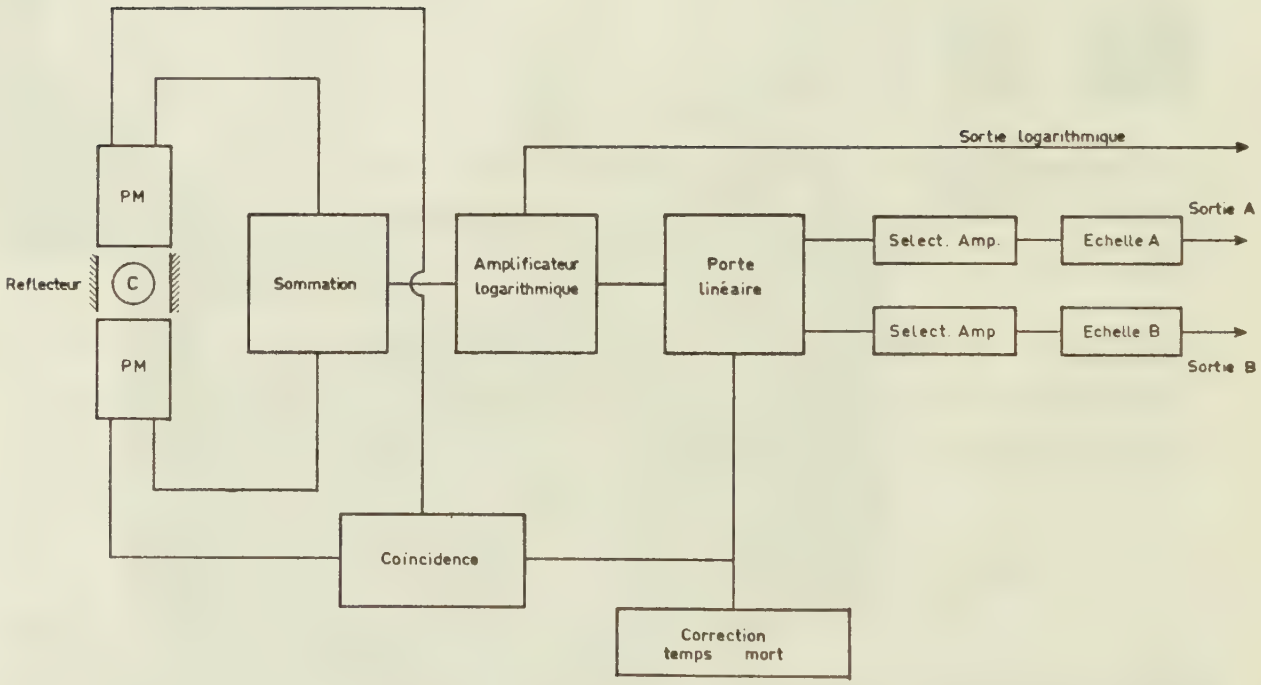
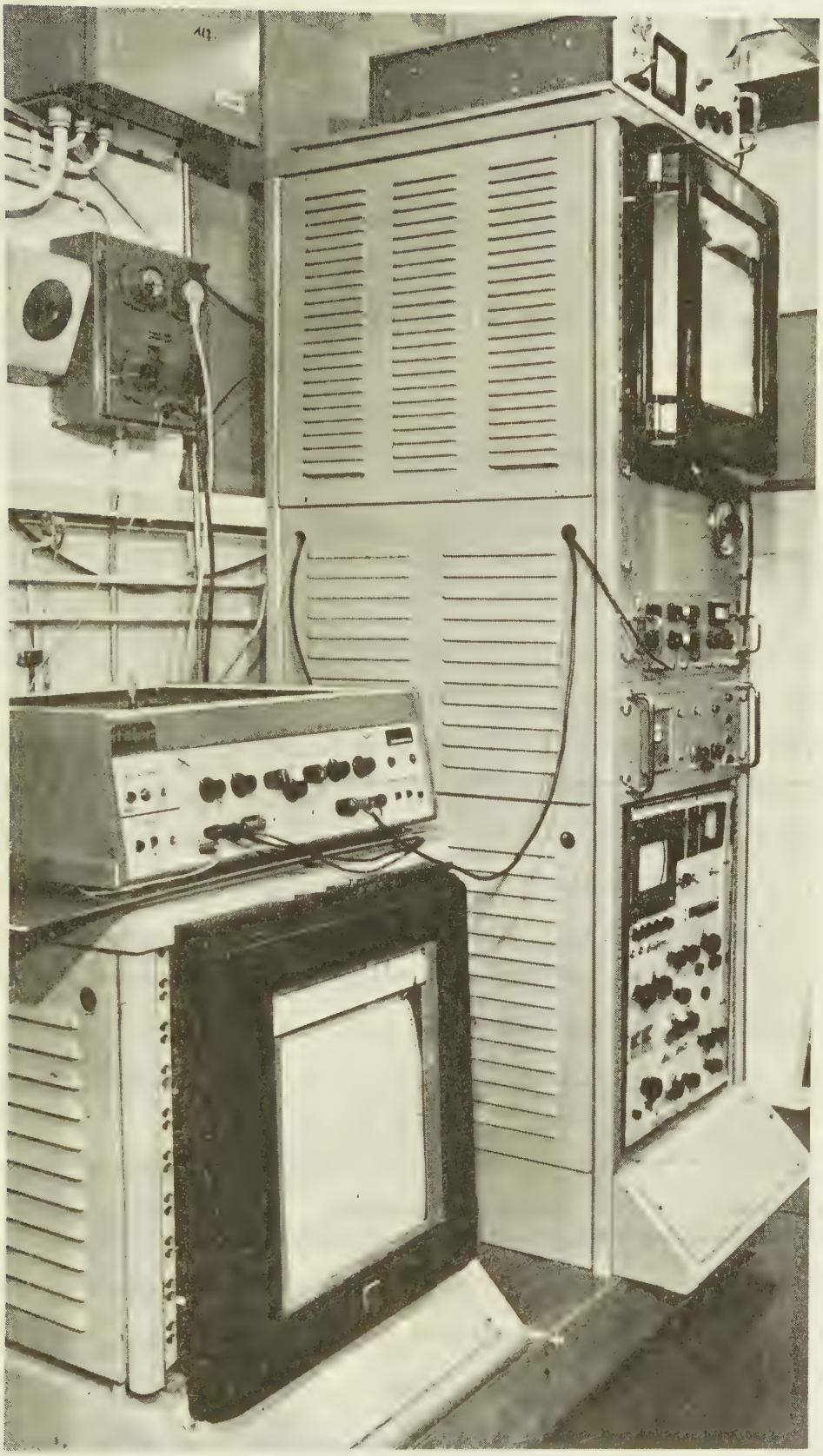


SCHÉMA DE PRINCIPE DU SPECTROMÈTRE

FIG. 13



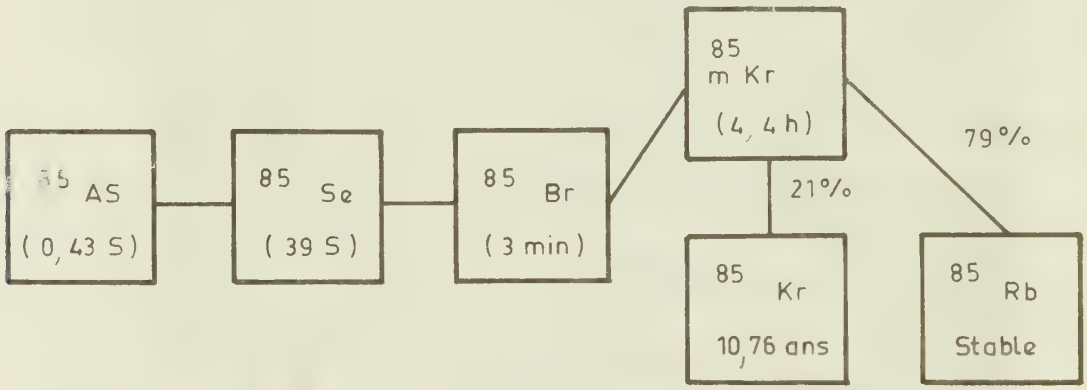
VUE PARTIELLE DE LA CHAINE DE COMPTAGE

FIG. 14

III.3 - ORIGINE ET DETECTION DU KRYPTON 85

L'isotope de masse 85 du krypton existe sous forme de traces dans le krypton naturel qui a pour composition isotopique Kr 78 (0,354 %) ; Kr 80 (2,27 %) ; Kr 82 (11,56 %) ; Kr 83 (11,55 %) ; Kr 84 (56,9 %) ; Kr 86 (17,57 %) ; Kr 85 ($\simeq 0{,}5.10^{-11}$) [1]

D'autre part, le krypton 85 est un produit de fission appartenant à la chaîne de filiation suivante :

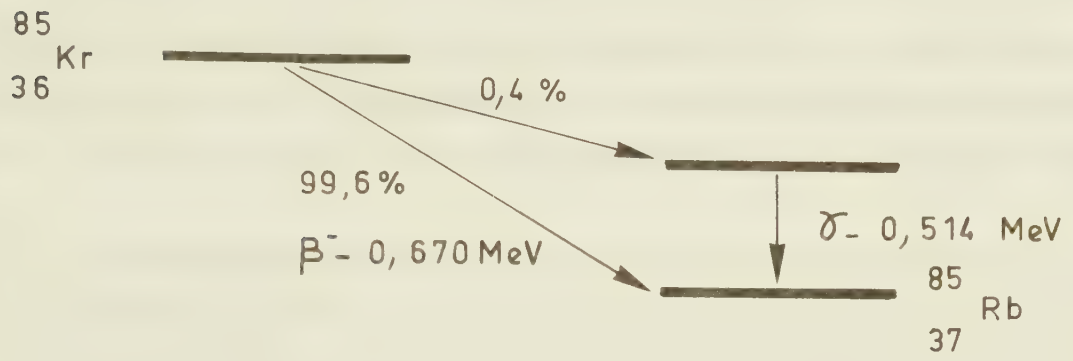


Le nombre d'atomes de krypton 85 produits par 100 fissions est exprimé par **R** % (rendement de fission) qui vaut [22] :

R % Rendements de fission du ^{85}Kr		
Eléments fissiles	Neutrons thermiques	Neutrons rapides
^{235}U	0,285 %	0,321 %
^{233}U	0,486 %	-
^{238}U	-	0,173 %
^{239}Pu	0,143 %	0,141 %

Sa période de décroissance radioactive de 10,76 ans [22] le fait classer parmi les radioéléments à vie longue utilisables en métrologie [23]

La désintégration du krypton 85 :



s'effectue avec une émission β d'énergie 0,670 MeV, accompagnée d'une émission de photons γ d'énergie 0,514 MeV, à raison de 1 photon γ pour 250 désintégrations. Il paraît donc plus aisé de détecter le krypton 85 par son rayonnement β, ce qui nous a conduit à utiliser un spectromètre à scintillations β conçu pour le comptage de solutions liquides, dont nous avons modifié la cellule de détection.

Au cours de la mise au point de la détection, nous avons essayé les divers procédés suivants :

1°- Scintillation en phase liquide

La solution scintillatrice la mieux adaptée proposée par le constructeur de l'appareil a la composition suivante :

Solvant : toluène

Scintillateur primaire : PPO (2,5 diphenyloxazole)

Scintillateur secondaire : POPOP (P-bis, 2,5 phényloxazile - B)

Cette solution fournit le rapport signal/bruit le plus élevé mais présente, dans notre cas d'utilisation, les deux inconvénients suivants :

a) la présence de traces d'oxygène dans la solution perturbe de façon sensible le rendement par affaiblissement chimique (quenching).

b) le barbottage du gaz dans la solution durant plusieurs heures entraîne une partie du solvant et la solution scintillatrice se concentre en produits scintillateurs, ce qui amène une variation du rendement de comptage.

Pour ces raisons, nous avons cherché le mode de détection le mieux adapté à notre problème, fournissant un rapport signal/bruit élevé. Par commodité de manipulation, nous avons effectué les essais de détection avec une source de césium 137 (β 514 KeV et activité 20 μ Ci). Les résultats de ces essais sont présentés par ordre croissant du rapport S/B (signal/bruit) dans le Tableau **II** , l'examen de celui-ci suscite les commentaires suivants :

1 - Dépôt de scintillateur plastique sur les parois de la cellule de détection

Le rapport S/B est faible et la difficulté d'obtenir des couches d'égale épaisseur entraîne une grande dispersion des résultats.

2 - Scintillateur plastique en paillettes ou copeaux

Ce conditionnement réalise une grande surface de contact gaz-détecteur [24] et il est facile à obtenir, nous avons tenté de l'employer, mais le rapport S/B est très inférieur à celui obtenu avec la même quantité de scintillateur (3,2 g) sous forme de plaquettes (à cause du bruit de fond élevé avec les paillettes).

3 - Scintillateur plastique en plaquettes

Cette forme s'est révélée la plus pratique pour obtenir un rapport S/B élevé ; la reproductibilité des résultats est bonne d'un lot de plaquettes à un autre. Nous avons vérifié que la disposition des plaquettes dans la cellule de détection n'influence pas le taux de comptage.

Ayant choisi ce dernier type de scintillateur, nous avons étudié le rendement de détection en fonction de la surface de contact scintillateur - gaz porteur (à teneur constante en ^{85}Kr). L'allure de la courbe de rendement (figure 15) est analogue à celle donnée par R. PANNETIER [1] pour l'influence de l'épaisseur du scintillateur sur le taux de comptage pour une source β ($^{90}Sr + ^{90}Y$) le maximum de cette courbe provient du fait que le rendement augmente avec le volume du scintillateur jusqu'à ce que l'absorption lumineuse de celui-ci entre en compétition et détermine une baisse du nombre de photons vus par les photomultiplicateurs.

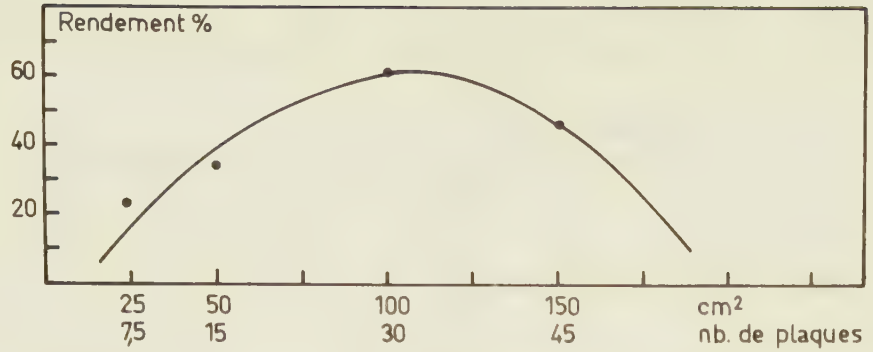
La détection du krypton 85 par son rayonnement β est très sensible puisque dans nos conditions opératoires nous obtenons une limite de détection de 10^{-10} Curie de krypton 85 (soit 7.10^{9} atomes) pour un gaz porteur ne contenant que des kryptons.

Il n'en est pas de même au cours des recuits d'échantillons de gaine provenant d'éléments combustibles irradiés, car d'autres produits de fission sont relâchés et viennent perturber la détection du ^{85}Kr. Par analyse γ du gaz porteur en fin d'expérience nous avons trouvé en plus du ^{85}Kr les produits de fission suivants (figure 16) : ^{144}Ce - ^{134}Cs - ^{137}Cs - ^{144}Pr - ^{95}Zr et ^{95}Nb. Le plus gênant de ces produits de fission est le césium 134 parce qu'il émet un β d'énergie 0,662 MeV très proche de celui du krypton 85 (0,670 MeV) il est donc pratiquement impossible de le discriminer électroniquement même avec la "fenêtre de comptage" très étroite adoptée sur le discriminateur (figure 17) cette difficulté nous a conduit à éliminer le ^{134}Cs par voie chimique en faisant barbotter le gaz porteur dans le di-(éthyl-hexyl)-orthophosphoric acide (D_2HPA) qui a une grande affinité pour les alcalins. L'efficacité de cet agent sur les césium (^{134}Cs et ^{137}Cs) a été prouvée de la manière suivante :

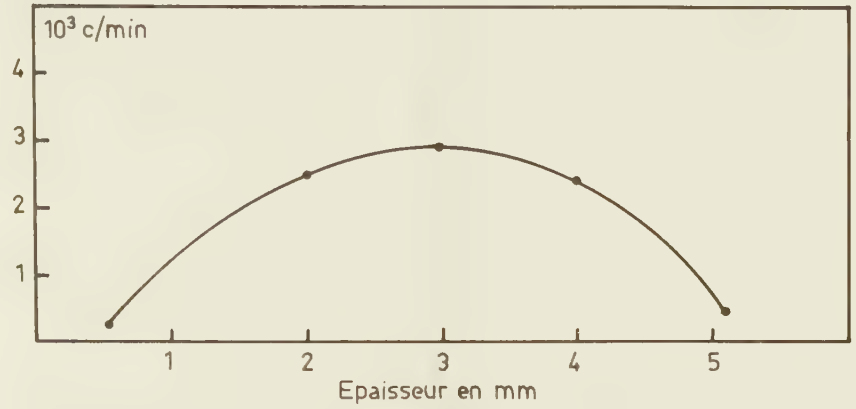
Durant le recuit d'un échantillon de gaine le barbottage du gaz porteur dans le D_2HPA est interrompu pendant une heure, il s'en suit une montée de l'activité jusqu'au moment où le barbottage est rétabli, à cet instant l'activité décroît rapidement pour se rétablir au niveau normal de l'activité due au krypton 85. La figure 18 montre la courbe d'activité au cours des trois stades du recuit, sur le cliché correspon-

Type du scintillateur		Bruit de fond B en C/min.	Signal en S en C/min.	Rapport S/B
Scintillateur plastique en dépôt sur les parois de la chambre de mesure (3 essais)		204 111 92	43 000 23 500 45 000	210 213 500
Scintillateur plastique en paillettes (2 x 3 x 0,5) 3,2 grammes		250	105 000	420
Scintillateur plastique en plaquettes 10 x 33 x 0,5 mm 3,2 g = 50 cm^2		55	103 000	1 880
Scintillateur plastique en plaquettes 10 x 33 x 0,5 mm 6,4 g = 100 cm^2		67	193 000	2 880
Solution toluène + PPO + POPOP 10 ml		53	229 000	4 300

TABLEAU II



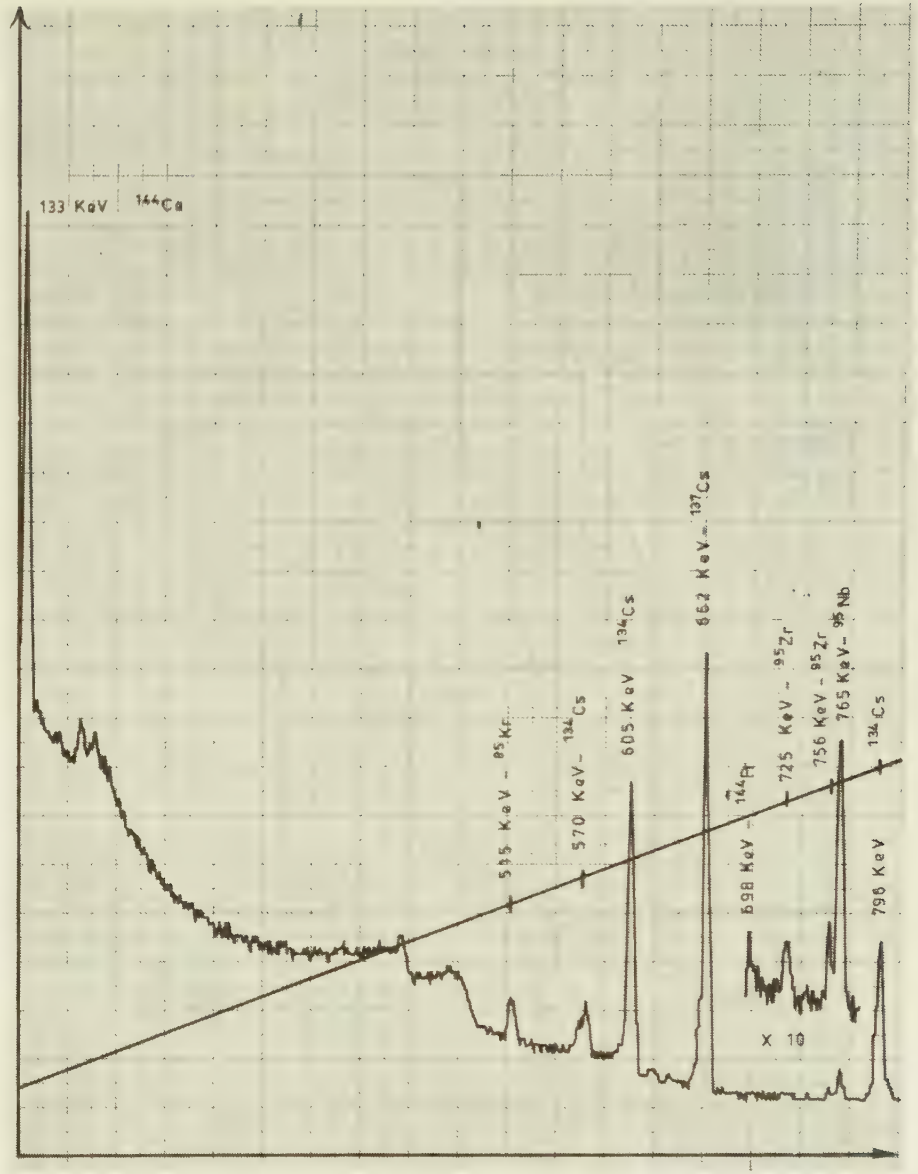
COURBE DE RENDEMENT DU SPECTROMETRE POUR LE KRYPTON.85 EN FONCTION DE LA SURFACE DU DETECTEUR OU DU NOMBRE DE PLAQUETTES.



INFLUENCE DE L'EPAISSEUR DU SCINTILLATEUR SUR LE TAUX DE COMPTAGE POUR UNE SOURCE DE Sr_Y_90 (β 0,6 et 2,4 MeV). d'après R. Pannetier [1]

RENDEMENT DU SCINTILLATEUR

FIG. 15



SPECTRE γ DES PRODUITS DE FISSION RELACHÉS PAR UNE GAINE

FIG. 16

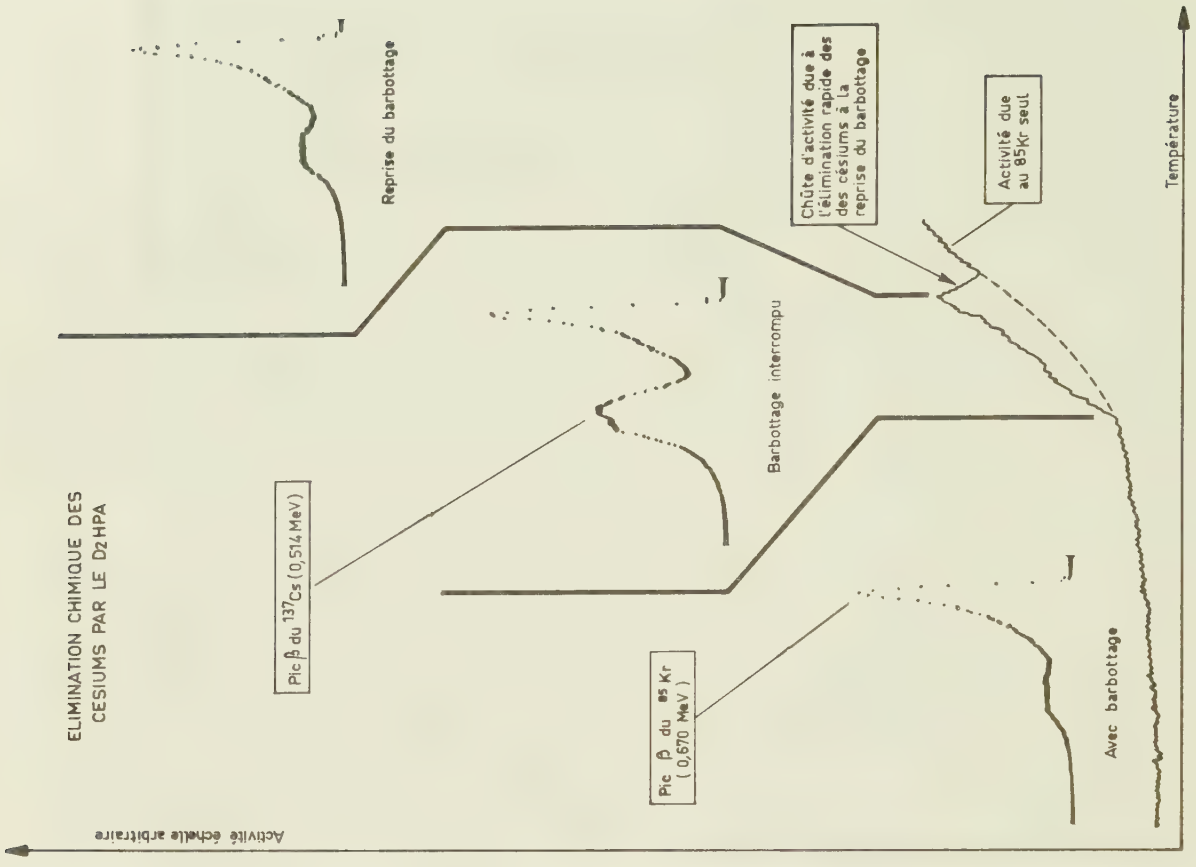
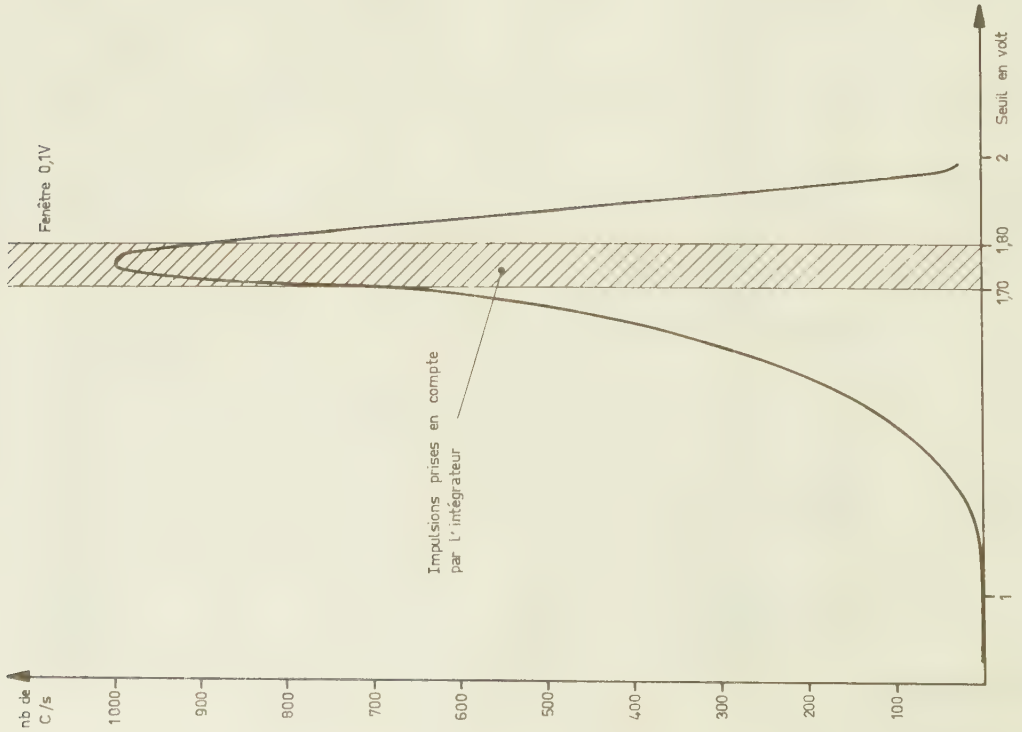


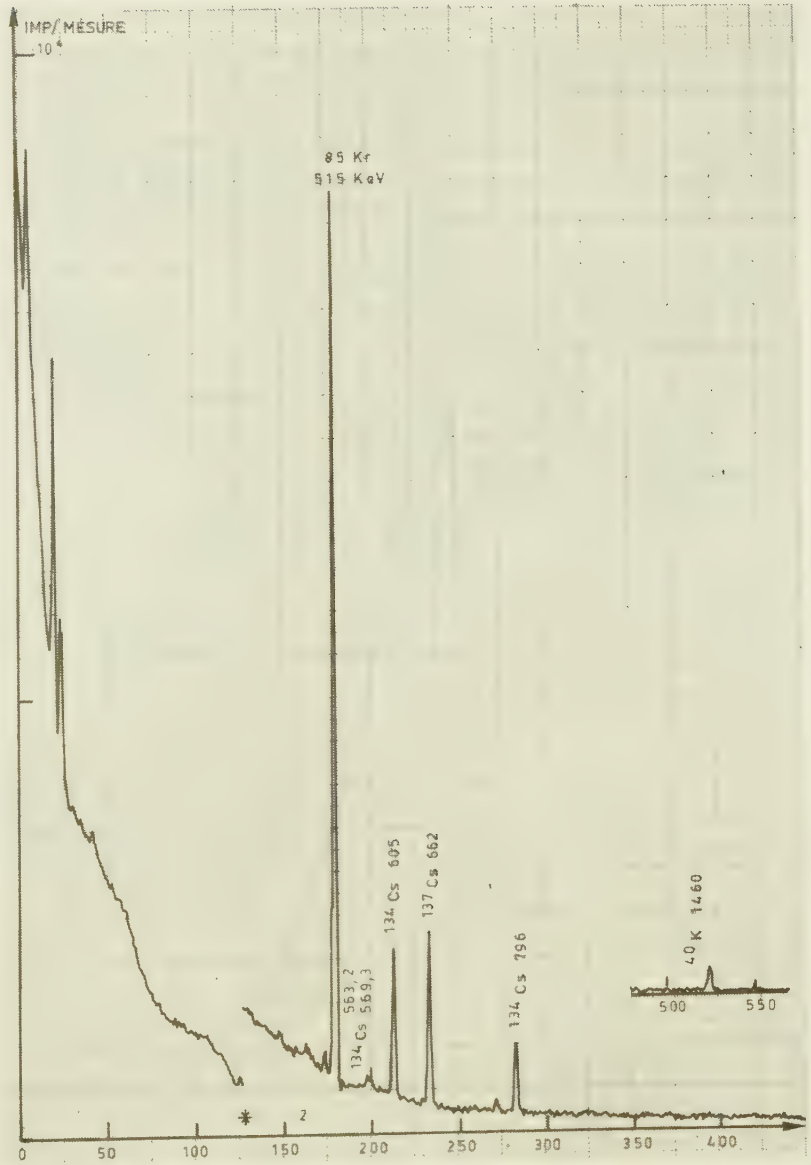
FIG. 18



SPECTRE β DU KRYPTON - 85 PUR ET FENÊTRE DE COMPTAGE.

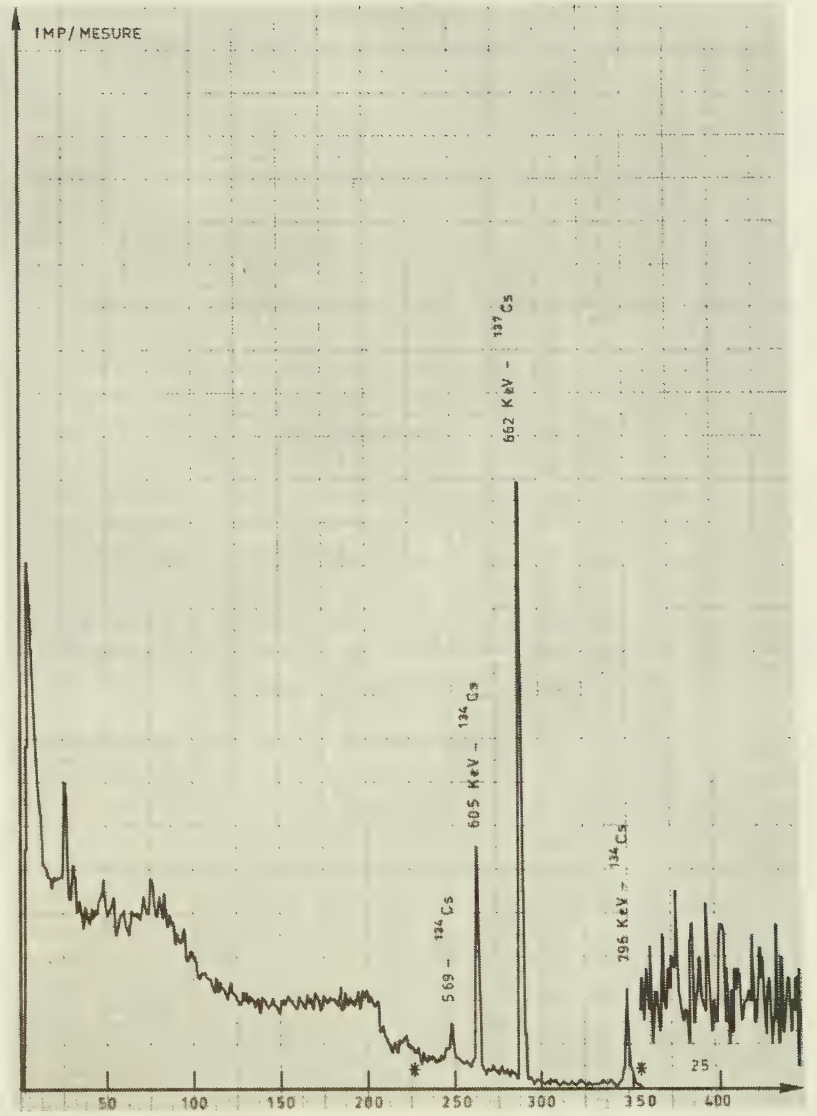
FIG, 17

dant à l'interruption du barbottage, on remarque l'importance du pic β du ^{137}Cs par rapport à celui du ^{85}Kr. Quand le barbottage est rétabli on enregistre une diminution rapide de l'activité due aux césiums et la courbe indique de nouveau l'activité du krypton 85 seul. En fin d'expérience des spectrométries γ ont été effectuées sur le gaz porteur (figure 19) et sur le D_2HPA (figure 20) ; les spectres obtenus confirment l'efficacité du D_2HPA vis-à-vis des produits de fission alcalins (^{134}Cs et ^{137}Cs).



SPECTRE γ DES PRODUITS DE FISSION RESTANT DANS LE GAZ PORTEUR APRÈS BARBOTTAGE DANS LE D_2 HPA

FIG. 19



SPECTRE γ DES PRODUITS DE FISSION RETENUS PAR LE D_2 HPA

FIG. 20

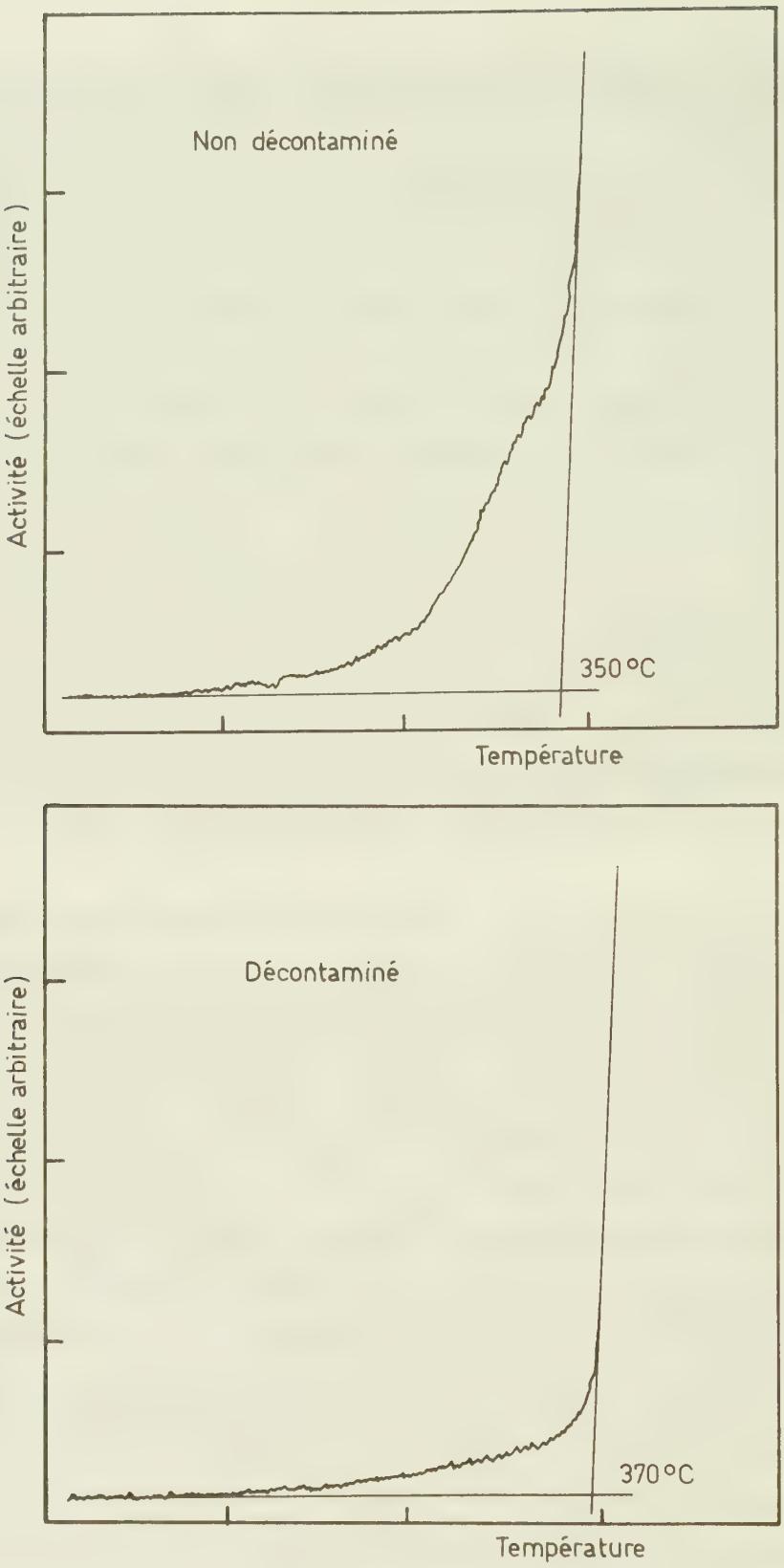
III.4 - PREPARATION DES ECHANTILLONS DE GAINE

Entre le prélèvement des échantillons sur l'élément combustible et le recuit qui permet la détermination de la température intérieure gaine, un certain nombre d'opérations sont nécessaires, elles constituent la préparation des échantillons :

- Le dégainage : les échantillons de gaine prélevés par tronçonnage contiennent du combustible qu'il faut éliminer mécaniquement en le chassant à l'aide d'un poinçon monté sur une presse hydraulique.

- Le nettoyage : après dégainage les échantillons retiennent encore un peu de combustible fixé à la paroi interne de la gaine, surtout lorsqu'il y a eu accrochage du combustible par réaction chimique entre les composants de la gaine et du combustible. Pour débarrasser la paroi interne des fragments de combustible, on la frotte énergiquement avec une brosse métallique du genre écouvillon d'armurier.

- La décontamination : le brossage élimine la plus grande partie du combustible qui adhérait à la gaine, mais celle-ci est encore très contaminée en combustible et produits de fission. La première phase de la décontamination consiste à dissoudre ces substances contaminantes dans un acide sans attaquer la gaine elle-même. Le procédé que nous avons mis au point pour cette décontamination est une immersion de plusieurs heures dans l'acide nitrique concentré, suivi d'un nettoyage par ultra-sons dans l'alcool éthylique. Nous avons vérifié que ce traitement ne perturbe pas le relâchement du krypton 85 au cours du recuit de mesure : la figure 21 montre les courbes de dégagement du krypton 85 pour deux échantillons voisins, l'un non décontaminé (préparation arrêtée au stade du brossage) et l'autre décontaminé par immersion de 100 heures dans l'acide nitrique concentré ; on constate que la décontamination par l'acide nitrique diminue considérablement le bruit de fond dû aux produits de fission avant la montée d'activité due au krypton 85, ce qui entraîne, dans ce cas, une erreur d'interprétation de la courbe d'une vingtaine de degrés.



INFLUENCE DE LA DÉCONTAMINATION

FIG. 21

CHAPITRE IV

RÉSULTATS

IV.1 - INTERPRETATION DE LA COURBE DE RELACHEMENT DU KRYPTON 85

La courbe expérimentale obtenue avec le traceur X - Y (figure 22) donne l'activité du krypton 85 dans le gaz porteur en fonction de la température de l'échantillon de gaine. Elle est décomposable en quatre parties :

1 - une partie horizontale aux basses températures pour lesquelles il ne se produit aucun relâchement de krypton 85,

2 - une partie légèrement ascendante indiquant un faible relâchement de krypton-85,

3 - une partie à très forte pente correspondant au relâchement intense du krypton 85,

4 - un palier quand tout le krypton 85 est relâché, le circuit de mesure étant fermé, l'activité reste constante.

Puisque le relâchement du krypton 85 s'amorce progressivement, il est nécessaire de définir sur la courbe de relâchement le point qui correspond le mieux à la température d'irradiation. Les points A et B portés sur la figure 22 ont été utilisés par divers chercheurs [17] . Dans son travail sur les gaines en acier inoxydable du réacteur rapide de DOUNREAY, SWANSON [20] a utilisé la température obtenue en faisant la moyenne des températures correspondant à A et B ; il a montré que les moyennes $\frac{A + B}{2}$ étaient plus proches des températures prédites. Devant ces divergences d'interprétation, nous avons pensé qu'il était indispensable d'effectuer des expériences permettant de définir la meilleure interprétation de la courbe activité-température dans le cas des gaines en zircaloy.

Ne possédant pas d'échantillon dont la température d'irradiation soit connue avec précision, nous avons utilisé une propriété du phénomène de relâchement lorsqu'un recuit est interrompu pendant la phase de relâchement du krypton 85 (figure 23) et l'échantillon de gaine refroidi rapidement (trempe), on peut retrouver la température de cette interruption au premier recuit en pratiquant un second recuit jusqu'à température supérieure.

Sur quatre échantillons de gaine, un premier recuit a été effectué jusqu'à température T , suivi d'un refroidissement rapide (50°C/minute environ), puis un second recuit jusqu'à température supérieure à T en vue de retrouver la température d'arrêt du premier recuit T , soit respectivement T' , T'' et T''' les températures correspondant aux points A , B et $\frac{A + B}{2}$ déterminées lors de ce second recuit.

Le tableau suivant regroupe les valeurs de T , T' , T'' et T''' et leurs écarts.

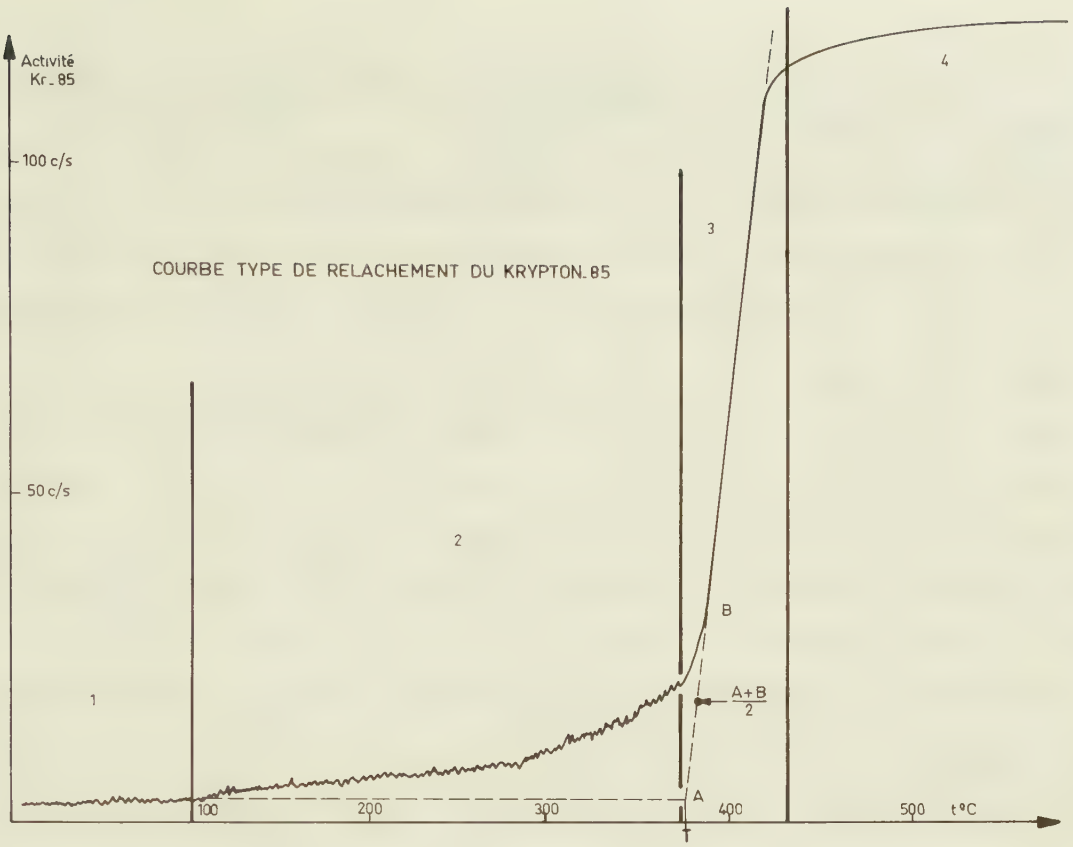

Activité
Kr-85
100 c/s
50 c/s
COURBE TYPE DE RELACHEMENT DU KRYPTON-85
1
2
3
4
B
A+B
2
A
100
200
300
400
500
t°C

FIG. 22

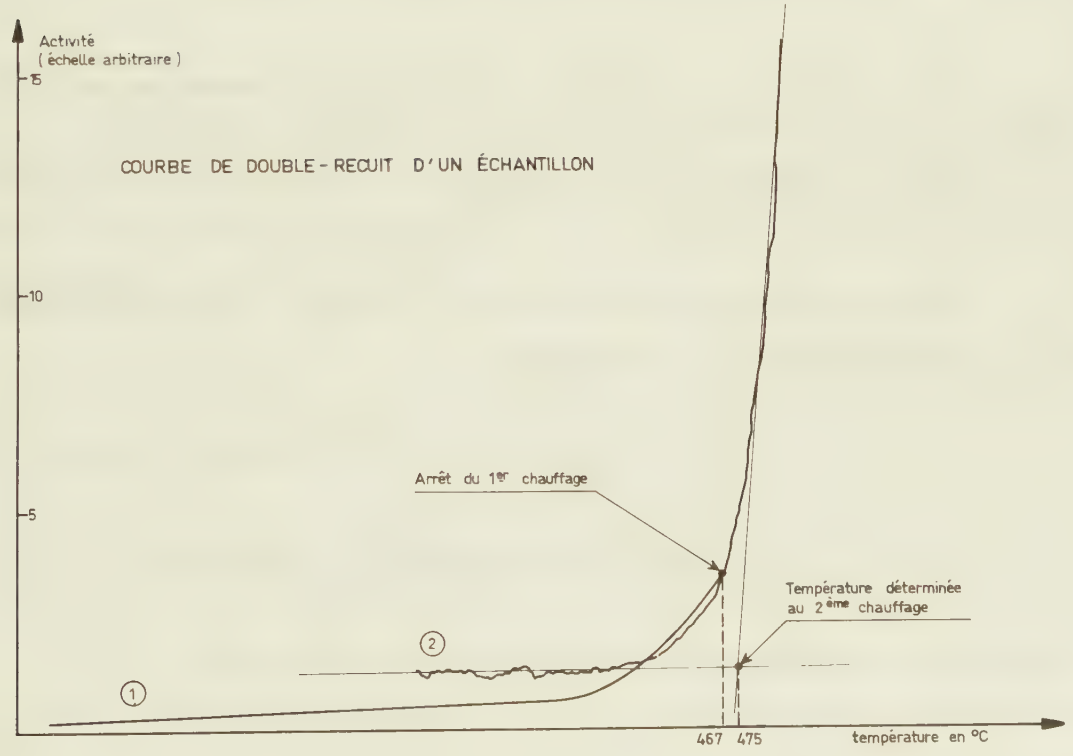

Activité
(échelle arbitraire)
15
10
5
COURBE DE DOUBLE-RECUIT D'UN ÉCHANTILLON
Arrêt du 1er chauffage
Température déterminée
au 2ème chauffage
1
2
467
475
température en °C

FIG. 23

Température maximale du premier recuit T	Température correspondant au point A T'	Ecart T' - T	Température correspondant au point B T''	Ecart T'' - T	Température correspondant à $\frac{A + B}{2}$	Ecart T''' - T
388	380	- 8	416	+ 28	398	+ 10
467	475	+ 8	485	+ 18	480	+ 13
467	467	0	481	+ 14	474	+ 7
570	576	+ 6	596	+ 26	586	+ 16

On constate que les écarts les plus faibles sont obtenus avec les valeurs T' qui correspondent au point A d'intersection de la partie 1 horizontale avec la tangente à la partie 3 de la courbe de relâchement. Il semble d'ailleurs logique que le point A donne la température la plus probable ; en effet, si le phénomène de relâchement se produisait totalement et instantanément pour une seule température, la courbe (théorique) serait composée de deux droites se coupant au point A.

Nous prendrons donc le point A comme repère de température sur toutes les courbes expérimentales utilisées pour la détermination de la température de la face interne des gaines d'éléments combustibles irradiés.

Voyons maintenant à quelle précision nous conduit cette manière d'interpréter la courbe de dégagement du krypton 85.

IV.2 - PRECISION DE LA DETERMINATION DE TEMPERATURE

Dans le but d'améliorer la précision sur les températures déterminées, nous effectuons deux corrections correspondant à deux erreurs systématiques liées au montage expérimental et à la contrainte de protection biologique.

IV.2.1 - Correction sur la température de l'échantillon

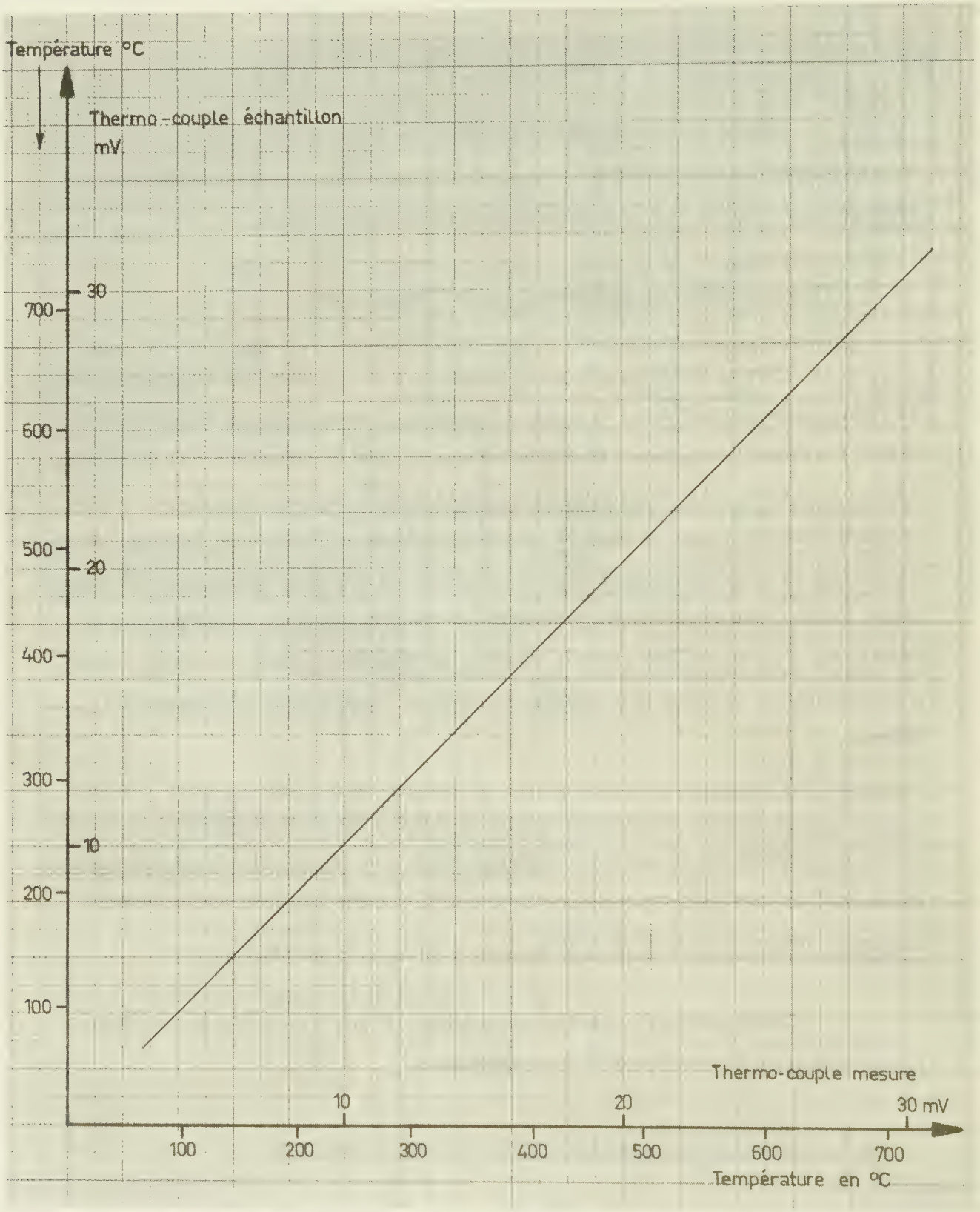
L'erreur sur la mesure de la température de l'échantillon de gaine provient de l'absence de contact entre la soudure chaude du thermocouple de mesure et l'échantillon. Ce contact ne pouvant être établi d'une manière reproductible lors de la fermeture de l'enceinte porte-échantillon avec les télémanipulateurs, nous avons délibérémment choisi de placer la soudure chaude à quelques millimètres de l'échantillon et de corriger la température ainsi mesurée. Nous avons obtenu la valeur de cette correction à l'aide d'une enceinte porte-échantillon spéciale munie de deux thermocouples identiques, l'un en position normale près de l'échantillon, l'autre au contact intime d'un échantillon de gaine non irradiés, le montage ayant été réalisé hors cellule blindée.

Le premier thermocouple était relié à la voie X et le second à la voie Y du traceur. La courbe de correction obtenue est donnée figure 24 . La température réelle de l'échantillon est supérieure de 1 à 5°C à celle indiquée par le thermocouple de mesure entre 250 et 600°C.

Cette première correction est positive, il faut l'ajouter à la température lue en abscisse sur la courbe activité-température.

IV.2.2 - Correction sur le temps de transfert du gaz porteur

Pour obtenir une courbe de relâchement du krypton 85 utilisable pour la détermination de la température intérieur-gaine, il est nécessaire de recuire l'échan-



COURBE DE CORRECTION DE LA TEMPÉRATURE ÉCHANTILLON

FIG. 24

tillon de gaine à température linéairement croissante et de déceler le krypton 85 dès son apparition. La solution idéale serait de détecter le krypton 85 là où il est relâché, c'est-à-dire au niveau de l'échantillon. Cette solution est impossible parce que d'une part, la radioactivité de l'échantillon interdit toute détection sensible à faible distance, et d'autre part, qu'il n'existe pas, à notre connaissance, de détecteur fonctionnant aux températures atteintes durant le recuit. Dans ces conditions, il est apparu nécessaire d'éloigner et de protéger le détecteur de krypton 85 ; l'éloignement entraîne évidemment un certain retard entre le relâchement du krypton par l'échantillon et sa détection, pour réduire ce retard on fait circuler à grande vitesse un gaz porteur en circuit fermé de telle sorte que l'enrichissement de ce gaz en krypton 85 soit détecté en permanence. Nous avons mesuré le temps de transfert du gaz porteur entre l'échantillon et le détecteur en ouvrant le circuit au niveau de l'échantillon et en mesurant le temps d'apparition du début de déclin de l'activité détectée ; le temps moyen mesuré est de deux minutes, avec un débit de 3 l/h pour le gaz porteur. Ce temps de transfert amène une correction sur la température enregistrée. En effet, le recuit s'effectue dans un four dont la température augmente linéairement avec le temps à raison de 2°C par minute, ainsi entre l'instant où le krypton 85 est détecté et celui où il a été relâché par l'échantillon, il s'est écoulé deux minutes durant lesquelles la température du four a augmenté de 4°C. La température enregistrée est donc en avance.

Cette seconde correction est négative, il convient de retrancher 4°C à la température lue sur l'axe des abscisses de l'enregistreur X - Y.

IV.2.3 - Evaluation de l'imprécision

La précision sur la détermination de la température de gaine par interprétation de la courbe de relâchement du krypton 85, ne dépend pratiquement pas de la précision sur la mesure d'activité du gaz porteur, mais seulement de la précision sur la mesure de la température portée en abscisse sur la courbe de relâchement.

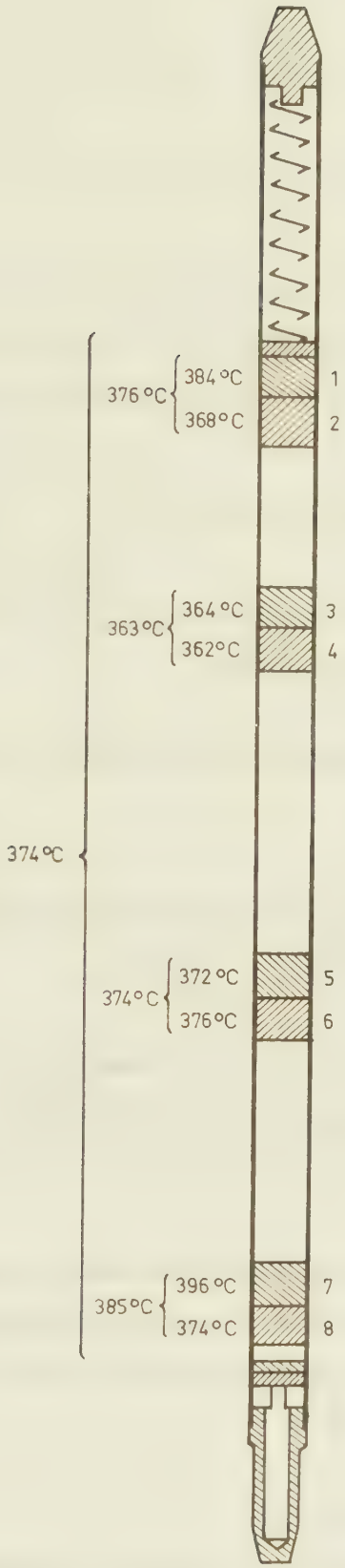
Après les deux corrections précédentes, la précision sur la mesure de la température ne dépend plus que des erreurs fortuites provenant :

- de la compensation automatique de soudure froide, qui introduit une erreur de $\pm$ 0,5°C,
- de la conversion des millimètres en millivolts, une lecture à $\pm$ 0,5 mm entraîne une erreur de $\pm$ 0,1 mV,
- puis de la conversion des millivolts en degrés, sachant que $\pm$ 0,1 mV équivaut à $\pm$ 2,5°C.

La somme de ces erreurs fortuites appréciables est de $\pm$ 3°C, mais une autre erreur, celle-là difficile à apprécier, découle du tracé de la tangente à la courbe de relâchement.

A cause de cette difficulté nous avons évalué l'imprécision globale sur nos résultats par des essais de reproductibilité sur des couples d'échantillons voisins prélevés sur un même élément combustible. La position des prélèvements et les résultats sont indiqués sur la figure 25 et le tableau suivant :

Numéro du prélèvement	1	2	3	4	5	6	7	8
T_{ig} en °C	384	368	364	362	372	376	396	374
Ecart à la moyenne (374)	+ 10	- 6	- 10	- 12	- 2	+ 2	+ 22	0
Moyenne par couple	376		363		374		385	
T_{ig} moyenne	374°C							



PLAN DE COUPE ET RÉSULTATS DU CRAYON N° 10 C4

FIG. 25

On remarque :

1°- que les écarts entre les deux échantillons d'un même couple sont de 16, 2, 4 et 22°C.

2°- une distribution des moyennes par couple bien centrée sur la température moyenne du crayon (374°C), puisque les écarts minimum et maximum sont de - 11°C et + 11°C, tandis que deux couples se rapprochent de cette moyenne à moins de 2°C près.

3°- que l'écart maximum à la moyenne est de + 22°C.

Par ailleurs, les essais de double recuit (IV.1) fournissent un écart de $\pm$ 8°C entre les températures réelles et mesurées.

Ces deux types d'essais permettent d'évaluer l'imprécision de la méthode à $\pm$ 20°C.

IV.2.4 - Influence de la vitesse de refroidissement de l'élément combustible après irradiation sur la précision de la méthode

En fin d'irradiation, la durée de refroidissement des éléments combustibles des réacteurs à eau pressurisée, est généralement de quelques heures. Les vitesses de refroidissement sont donc de l'ordre de 100°C/heure.

Afin de mettre en évidence l'influence de la vitesse de refroidissement de l'élément combustible sur la précision de la mesure de température de sa gaine, nous avons effectué trois recuits successifs sur un même échantillon. Le déroulement de l'expérience est le suivant (figure 26) :

- un premier recuit jusqu'à température T_1 ,
- suivi d'un refroidissement rapide (50°C/mn) jusqu'à la température ambiante,
- un deuxième recuit jusqu'à $T_2 > T_1$ ce recuit a permis de déterminer T'_1 comme précédemment décrit au Chapitre IV.1,

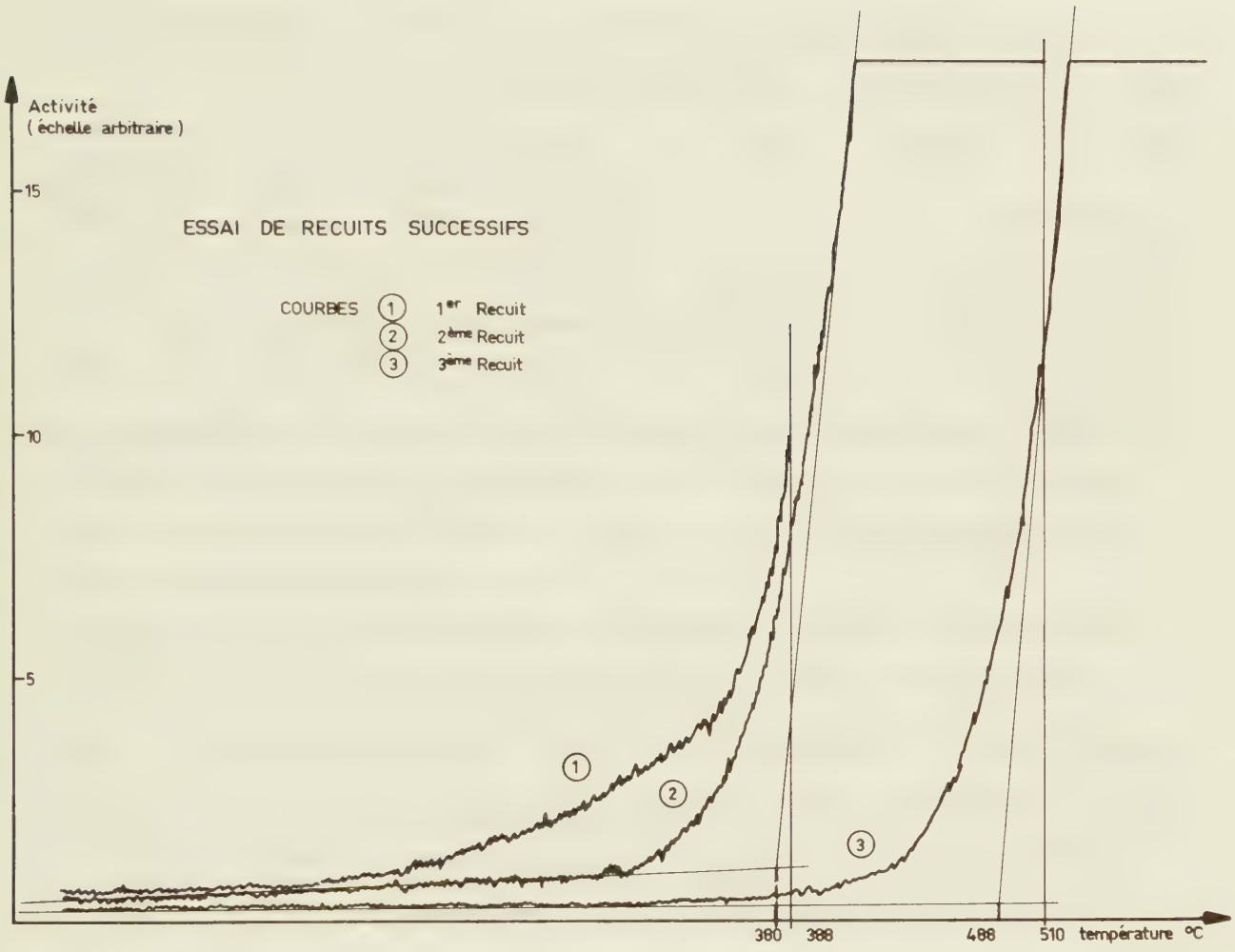

Activité
(échelle arbitraire)
15
10
5
ESSAI DE RECUITS SUCCESSIFS
COURBES
1 1er Recuit
2 2ème Recuit
3 3ème Recuit
1
2
3
380
388
488
510
température °C

FIG. 26

- suivi d'un refroidissement à 100°C/h jusqu'à la température ambiante,
- enfin, un troisième recuit jusqu'à $T_3 > T_2$, afin de retrouver la température du précédent arrêt, soit T'_2.

Le tableau suivant indique les températures déterminées et les écarts de type $T' - T$ pour les deux vitesses de refroidissement :

Températures	T_1 : 388 → T'_1 : 380	T_2 : 510 → T'_2 : 488
Refroidissement	rapide (3 000°/h)	lent (100°/h)
Ecarts en °C	- 8°	- 22°

On constate :

1°- que l'écart trouvé après refroidissement lent est plus grand que celui correspondant au refroidissement rapide ; donc que cette méthode de mesure sera d'autant plus précise que le refroidissement de la gaine de l'élément combustible sera plus rapide.

2°- que l'imprécision de $\pm$ 20°C que nous avions évaluée à partir des essais de double recuit et de reproductibilité, reste valable pour la vitesse de refroidissement la plus défavorable des éléments combustibles dans les réacteurs à eau pressurisée.

Par conséquent :

L'imprécision de cette méthode est de $\pm$ 20°C, ce qui conduit à une erreur relative de 5 % sur les températures intérieur-gaine (environ 400°C) des éléments combustibles des réacteurs à eau pressurisée actuels.

IV.3 - ESSAIS PRELIMINAIRE : IMPLANTATIONS A L'ACCELERATEUR SAMES

Le lecteur trouvera les principales caractéristiques de l'accélérateur SAMES dans l'annexe V.

IV.3.1 - Buts de l'essai

1°) Ces implantations constituent le cas le plus simple pour l'étude du relâchement du krypton 85 par le zircaloy parce que les ions incidents sont monoénergétiques et qu'il n'y a pas d'ions étrangers qui s'implantent simultanément comme dans les gaines d'éléments combustibles.

2°) Le zircaloy s'oxydant très facilement, il nous a paru intéressant de comparer le comportement à l'implantation et au relâchement du krypton 85 d'échantillons recouverts d'une couche d'oxyde ZrO_2. L'utilisation d'un accélérateur pour implanter du krypton 85 dans du zircaloy présente deux avantages : la surface bombardée n'est pas contaminée par des éléments étrangers, et quelques minutes de bombardement suffisent pour obtenir le même taux de dommage qu'après des milliers d'heures d'irradiation en pile.

IV.3.2 - Caractéristiques des implantations

Nous avons choisi de simuler les conditions d'irradiation en pile suivantes :

- flux neutronique : 2.10^{13} $n.cm^{-2}.s^{-1}$
- durée d'irradiation : 6 000 heures.

Après une telle irradiation, la surface interne de la gaine de l'élément combustible est imprégnée par les produits de fission (y compris le krypton 85 sous une épaisseur de 9 microns environ, et le taux de dommages est d'une dizaine de déplacements par atomes (dpa) dans cette couche.

Le calcul des conditions d'implantation à l'accélérateur (25) conduit aux paramètres suivants :

- énergie maximale des ions : 0,5 MeV
- densité du faisceau d'ions : 0,25 $\mu A.cm^{-2}$
- durée du bombardement : 30 minutes.

Le parcours moyen des ions de 0,5 MeV dans le zircaloy est de 0,2 micron (soit 45 fois plus petit que celui des produits de fission en pile).

Ainsi imprégnées par implantation, les pastilles de zircaloy contiennent environ 2,5 μ Ci.cm^{-2} de krypton 85, ce qui est l'ordre de grandeur de la teneur surfacique des échantillons de gaines irradiées. Notons que dans le cas des implantations à l'accélérateur, seuls les ions de krypton (*) sont responsables des dommages créés dans le zircaloy ; pour un même taux de dommage, la concentration atomique en krypton 85 implanté est donc 45 fois plus élevée dans la couche de 0,2 micron (pastille de simulation) que dans la couche de 9 microns (gaines réelles).

Pour maintenir la température de 300°C durant le bombardement par les ions, les pastilles de zircaloy sont plaquées sur un support chauffant introduit dans la chambre-cible de l'enceinte ultra-vide de l'accélérateur.

Le tableau suivant regroupe les diverses implantations réalisées à l'accélérateur :

N° d'irradiation et de pastille	Nature de la cible	Durée de l'implantation	Température de la cible
4	Zy 2	30 min.	300°C
17	Zy 2 **	30 min.	300°C
41	Zy 2 + ZrO_2 ***	30 min.	300°C

** Couche superficielle de 5 microns de zircone formée après implantation.
*** Couche superficielle de 5 microns de zircone formée avant l'implantation.

(*) Le mélange gazeux utilisé dans l'accélérateur contient du Kr 85 dilué dans du krypton naturel (cf. III.3).

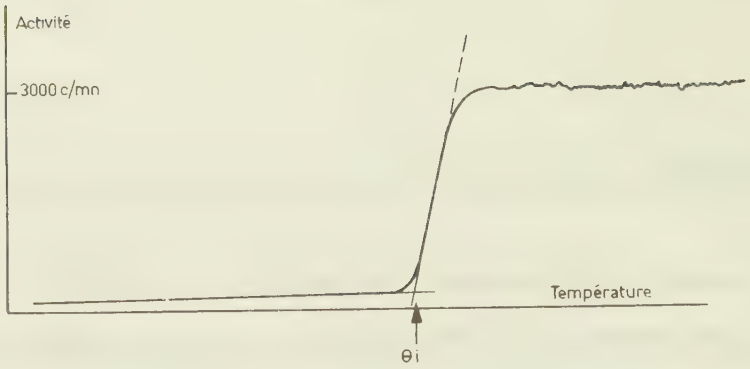
IV.3.3 - Résultats

La courbe de relâchement du krypton 85 de la pastille n° 4 (figure 27) a l'allure idéale correspondant à l'interprétation donnée au paragraphe IV.1, à savoir : une partie horizontale (absence de produits de fission), puis une branche ascendante à très forte pente et enfin le palier indiquant la fin du dégagement de krypton 85. L'analyse du gaz porteur par spectrométrie γ montre un pic unique qui est celui du krypton 85 pur (figure 28). Le palier final prouve que tout le krypton 85 s'est dégagé, ce que nous avons d'ailleurs vérifié par comptage β global de la pastille recuite.

La pastille n° 17 implantée dans les mêmes conditions que la pastille n° 4 a été oxydée après implantation. Aucun dégagement de krypton 85 ne s'est produit au cours d'un recuit jusqu'à 720°C. On a vérifié que l'activité globale du krypton implanté était la même avant et après recuit. L'examen micrographique montre une couche de ZrO_2 continue d'épaisseur 5 microns. Cet essai montre qu'une couche de zircone qui se produirait après l'irradiation en pile pourrait empêcher le relâchement du krypton 85 par la gaine (*).

Pour compléter cet essai, nous avons oxydé une pastille (n° 41) avant de l'implanter. L'activité β de cette pastille est deux fois plus faible que celles des pastilles n° 4 et n° 17, tandis que les conditions d'implantation ont été rigoureusement les mêmes. Il se pourrait donc que le krypton 85 s'implante moins facilement, toutes conditions égales par ailleurs, dans la zircone que dans le zircaloy. En outre, aucun dégagement de krypton ne s'est produit au cours du recuit de cette pastille jusqu'à 720°C. Il faut donc en conclure, compte tenu des résultats négatifs obtenus sur les pastilles n° 17 et n° 41, que la zircone qui se forme en surface du zircaloy, modifie le comportement du krypton 85 dans ce matériau, tant à l'impantation, qu'au relâchement.

(*) Par conséquent, le gaz porteur circulant dans le circuit de mesure ne doit pas contenir d'oxygène (argon U).



COURBE DE DÉGAGEMENT DU KRYPTON 85 DE LA PASTILLE N° 4

FIG. 27

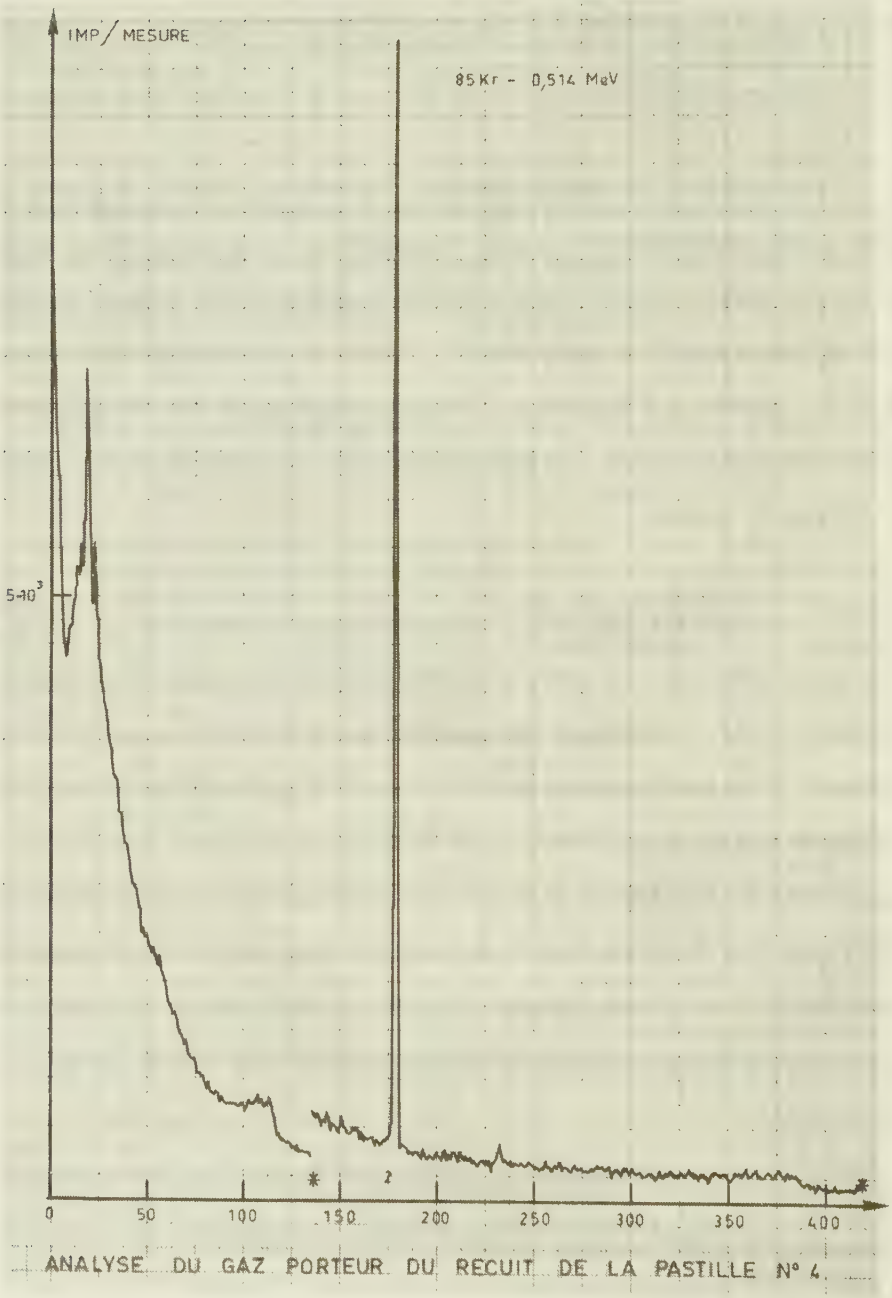


FIG. 28

IV.4 - MISE AU POINT DE LA METHODE

A titre d'essai pendant la période de mise au point de la manipulation, il nous a paru intéressant de comparer nos résultats expérimentaux avec ceux obtenus par SWANSON [20] sur des gaines du réacteur DFR (*) dont la nuance de l'acier inoxydable est voisine de celle de l'acier utilisé pour les gaines de réacteur RAPSODIE. En outre, nous possédions un profil thermique sur une "aiguille" combustible, élaboré à partir de mesures de température du sodium (fluide caloporteur de RAPSODIE) à l'entrée et à la sortie du canal contenant l'assemblage fissile concerné. Quelle que soit la confiance que l'on puisse accorder à ces estimations, l'erreur étant la même sur toutes les valeurs calculées, le profil obtenu est certainement représentatif du profil réel.

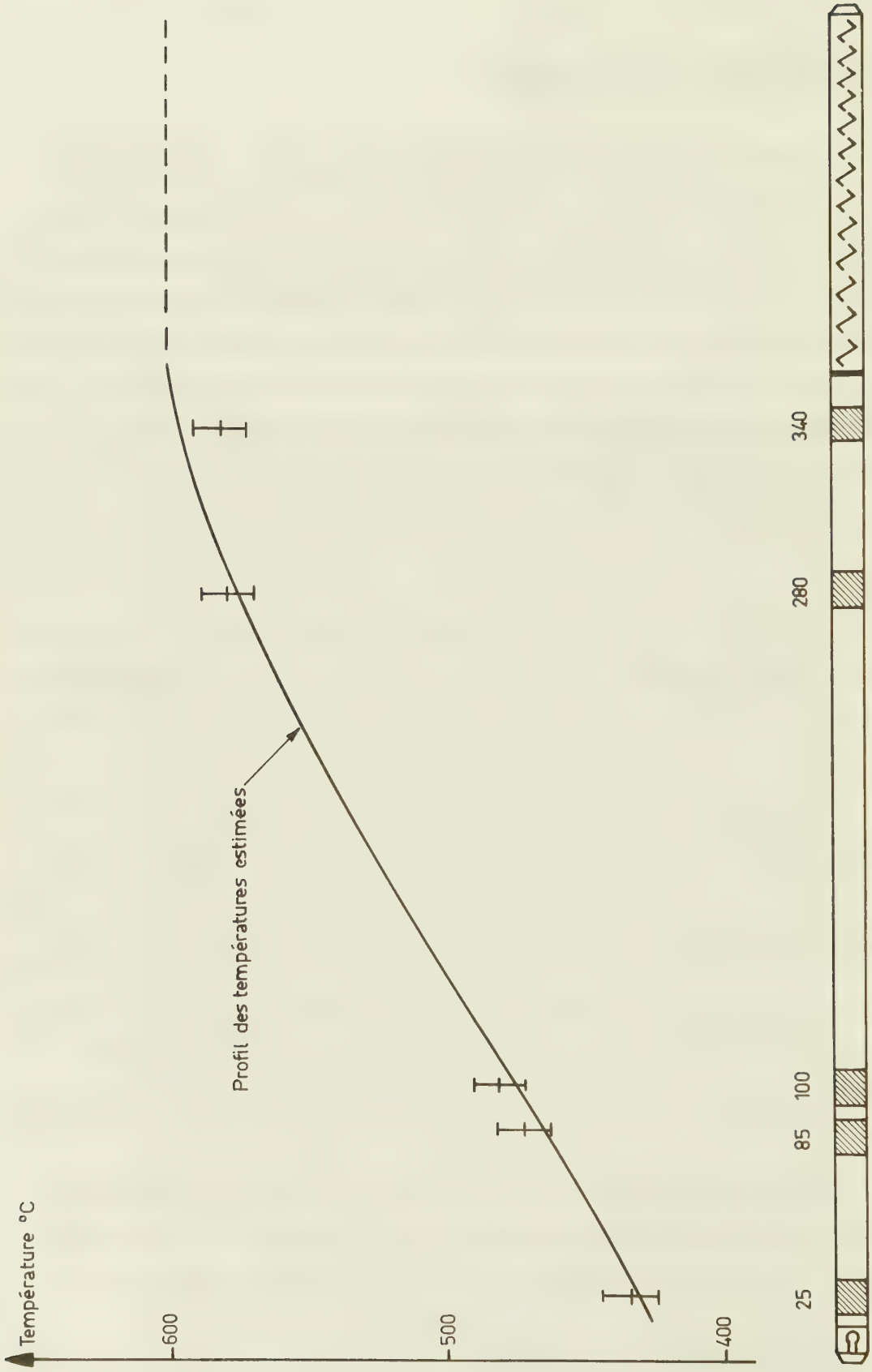
Des échantillons de gaine ont été prélevés dans l'aiguille n° 2 099 (position centrale 22) de l'assemblage n° 1.1.02.0010. Les températures déterminée avec notre méthode sont comparées avec les températures estimées dans le tableau suivant :

Repérage de l'échantillon au bas de l'aiguille en mm	25	85	100	230	340
Température estimée (calcul)	430	465	475	575	598
Température déterminée	434	474	482	580	582
Ecart en °C	+ 4	+ 7	+ 7	+ 5	- 16

Les températures déterminées sont portées sur le profil de températures (figure 29) ; ce profil correspond aux températures calculées pour la fibre moyenne de la gaine, or dans cette gaine on peut admettre que le gradient thermique entre

---

(*) DRF : Dounreay Fast Reactor (Dounreay Experimental Reactor Etablishment).



COMPARAISON ENTRE TEMPÉRATURES MESURÉES ET TEMPÉRATURES ESTIMÉES

FIG. 29

face interne et externe est d'une trentaine de degrés, ceci explique que les températures intérieur-gaine déterminées soient légèrement supérieures aux valeurs calculées. En somme la concordance entre températures calculées et déterminées est bonne.

Etant assuré par ces résultats du bon fonctionnement de la manipulation sur des gaines en acier inoxydable, il nous restait à utiliser la même technique pour les gaines en alliages de zirconium.

Au préalable, nous avons tenté d'étalonner la méthode avec des échantillons dont la température était facilement estimable par le calcul, comme c'est le cas de l'irradiation de courte durée que nous allons décrire au paragraphe suivant.

IV.5 - IRRADIATION EXPERIMENTALE DE COURTE DUREE

Afin de vérifier la possibilité d'utiliser notre méthode sur des éléments combustibles peu irradiés, nous avons mesuré la température intérieure de la gaine d'un élément combustible du type eau ordinaire irradié pendant moins d'une heure.

IV.5.1 - Caractéristiques de l'élément expérimental

La gaine est en zircaloy 4 (Tableau III), son épaisseur est de 0,43 mm pour un diamètre intérieur de 14,34 mm.

Le combustible est constitué par un empilement de pastilles d'oxyde d'uranium enrichi à 2,4 % (densité 10,6). Ces caractéristiques sont voisines de celles du combustible usuel dans les réacteurs modérés et refroidis à l'eau ordinaire.

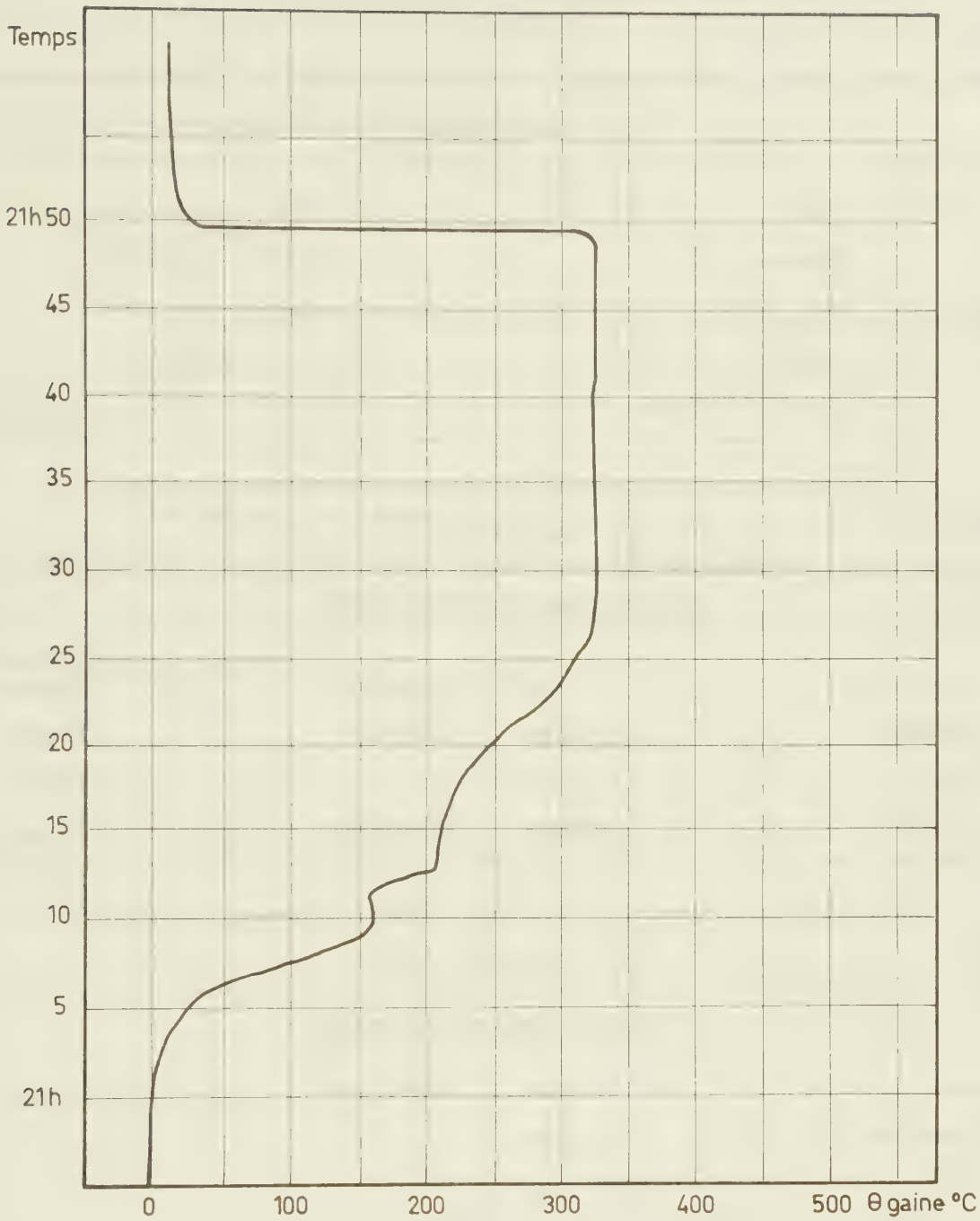
IV.5.2 - Historique de l'irradiation

Cet élément expérimental (ELO 19) a été irradié dans la pile expérimentale EL 3 (Saclay) en conteneur étanche rempli de NaK (alliage sodium-potassium) pressurisé à 100 bars.

L'irradiation a duré 50 minutes.

L'évolution de la puissance a été suivie par la température mesurée par thermocouple à l'extérieur de la gaine, la courbe (figure 30) indique un palier de 25 minutes à pleine puissance (600 $W.cm^{-1}$).

Cette irradiation présente un grand intérêt parce que sur un temps aussi court il n'y a pas eu de cyclage thermique et que la durée de refroidissement en fin d'irradiation est inférieure à une minute, ce qui constitue des conditions particuliè-



ELO 19_ MONTÉE EN PUISSANCE (Enregistrement des θ gaines)

FIG. 30

Le zircaloy-4 est un alliage de zirconium contenant :

ADDITIONS	
Etain	1,2 - 1,7 %
Chrome	0,07 - 0,13 %
Fer	0,18 - 0,24 %
Nickel	70 ppm
avec Fer + Chrome	0,28 - 0,37 %

IMPURETES			
Impuretés maximales admissibles			
Aluminium	75 ppm	Manganèse	50 ppm
Carbone	270 ppm	Silicium	120 ppm
Cobalt	20 ppm	Titane	50 ppm
Cuivre	50 ppm	Vanadium	50 ppm

POISONS NUCLEAIRES			
Teneur maximale admissible			
Bore	0,5 ppm	Hydrogène	25 ppm
Cadmium	0,5 ppm		
Hafnium	200 ppm		
Uranium	3,5 ppm		

L'alliage doit avoir une section de capture neutronique inférieure à 230 mbarns.

TABLEAU III

rement (et exceptionnellement !) intéressantes pour notre méthode de détermination de la température. En effet, un excellent recoupement entre puissance et température a été réalisé pour cette irradiation [26] .

IV.5.3 - Résultats

Pour une puissance linéïque de 600 $W.cm^{-1}$ et une température de 310°C [26] à l'extérieur de la gaine, le calcul (annexe I) donne une température intérieure de 341°C.

Les températures déterminées sur deux échantillons voisins sont de 330°C et 340°C ; ces valeurs proches de la température calculée (341°C) constituent un excellent contrôle de la technique utilisée, compte tenu des conditions d'irradiation que nous venons de voir.

IV.6 - IRRADIATION EXPERIMENTALE DE LONGUE DUREE

Le but de cette irradiation expérimentale dans un réacteur à eau pressurisée (PWR) était d'optimiser les caractéristiques d'éléments combustibles d'un type nouveau, susceptible d'être adopté pour une génération de réacteurs pressurisés en cours d'étude.

IV.6.1 - Caractéristiques des éléments combustibles

Ces éléments ont une longueur de 1,30 m et un diamètre extérieur d'environ 10 mm (la tendance actuelle est de développer des éléments de longueur supérieure, de l'ordre de 4 mètres). Ils sont disposés en assemblages à pas carré, leur espacement est réalisé par trois grilles (une à chaque extrémité et une au milieu). Le combustible est de l'UO_2 enrichi en ^{235}U. La gaine est en alliage de zircaloy 4 dont la compositions est donnée par le Tableau III .

IV.6.2 - Historique de l'irradiation

Nos investigations ont porté sur un assemblage irradié pendant un an (du 18 Septembre 1971 au 21 Septembre 1972) et ayant atteint une combustion massique moyenne de 20 000 MWj/t d'uranium. Durant l'irradiation la puissance linéïque maximum a évolué entre 600 et 650 W/cm. En fin d'irradiation le refroidissement du circuit primaire a débuté le 25 Septembre et s'est achevé le 27.

IV.6.3 - Résultats

Dans cet assemblage, six crayons ont été sélectionnés en fonction :

- de leur position par rapport au coeur du réacteur,
- de la présence ou de l'absence de dépôts externes sur les gaines,
- des résultats d'examens micrographiques.

Le Tableau IV regroupe tous les résultats développés dans ce paragraphe :

1°- Elément de référence (au centre de l'assemblage)

Aucun défaut n'a été décelé au cours des examens visuels, les micrographies montrent une couche de zircone de 5 à 10 microns d'épaisseur à l'intérieur de la gaine, dix échantillons ont été prélevés régulièrement le long de la colonne fissile pour obtenir la répartition longitudinale de la température de face interne de la gaine (figure 31) Ce profil de température peut être comparé à celui de la courbe de flux intégré obtenue par comptage des atomes radioactifs émetteurs γ de 0 à 2,5 MeV d'énergie (courbe n° 3)

Cette courbe est décomposable en deux parties :

- la bosse inférieure correspond à la forme du flux dans le réacteur en début de vie du coeur expérimental (courbe en trait interrompu) ;
- la bosse supérieure est due à une variation de la répartition du flux en fin de vie par suite d'une manoeuvre des barres de réglage du réacteur. Pendant cette période la courbe de flux était presque symétrique de la précédente par rapport au plan médian du réacteur.

Dans les réacteurs à eau pressurisée le gradient thermique longitudinal étant faible, la diffusion des produits de fission le long de la gaine des crayons est très réduite, on remarque alors que la distribution des températures mesurées a une allure très voisine de celle de la courbe de flux en début d'irradiation. La comparaison entre températures calculées et mesurées confirme cette analogie.

- En début d'irradiation

- dans la partie basse du crayon, le maximum de flux (bosse inférieure) correspond à une puissance linéïque de 600 W/cm, soit une température calculée de 420°C.

La température mesurée est de 440 ± 20°C.

Repère dans D 4	Numéro de crayon	Cote au bas de la colonne UO_2 en mm	Température déterminée par Kr 85 °C	Observations
7 - G	309	14 26 212 408 420 612 622 812 820 1 020	404 400 398 440 430 410 410 392 376 356	Crayon sain au centre de D 4 (référence)
4 - D	784	68 78 364 376 718 722	388 396 380 390 448 424	) Dépôt ext. de 0,06 mm) Dépôt ext. de 0,08 mm
13 - A	522	352 360 928 940	382 394 378 372	) Dépôt ext. de 0,07 mm
4 - B	55	536 544	438 436	
3 - C	697	794 800 806	370 390 370	Colonne d'UO_2 morcelée
1 - L	288	253 533 930	402 590 393	Surchauffe locale

TABLEAU IV

REPARTITION LONGITUDINALE DE LA TEMPÉRATURE DANS L'ÉLÉMENT DE RÉFÉRENCE

FIG. 31

- dans la partie haute du crayon, la puissance linéïque est de 400 W/cm correspondant à une température calculée de 390°C.

Les températures mesurées sont 376 ± 20°C et 392 ± 20°C (moyenne 384 ± 20°C).

- En fin d'irradiation

- dans la partie basse du crayon, la puissance linéïque est de 230 W/cm (température calculée 340°C),
- dans la partie haute du crayon, la puissance linéïque est de 450 W/cm (température calculée 395°C).

Ces diverses valeurs se trouvent réunies dans le tableau suivant :

Températures	Haut du crayon	Bas du crayon
calculées en début d'irradiation	390	420
calculées en fin d'irradiation	395	340
mesurées	384	440

Il apparaît donc une meilleure concordance entre les températures mesurées et les températures calculées, pour le début de vie de l'élément combustible.

Sur la figure 31 courbe 1, on a, en outre, fait le rapprochement entre le profil de température et la concentration en tritium dans la gaine. Ce tritium provient des fissions ternaires dans le combustible (rendement $0,85.10^{-4}$) [27] . Il quitte le combustible et se fixe dans la gaine en solution dans le réseau cristallin du zircaloy. On remarque la coïncidence de forme entre la courbe représentant la concentration en ^{3}H et le profil thermique.

On note également la bonne reproductibilité des mesures, puisque sur deux échantillons voisins l'écart moyen de température est de 7,5°C, soit légèrement inférieur à 2 %.

Les températures mesurées sur les cinq autres crayons du même assemblage sont comparées au profil thermique de ce crayon de référence (figure 32)

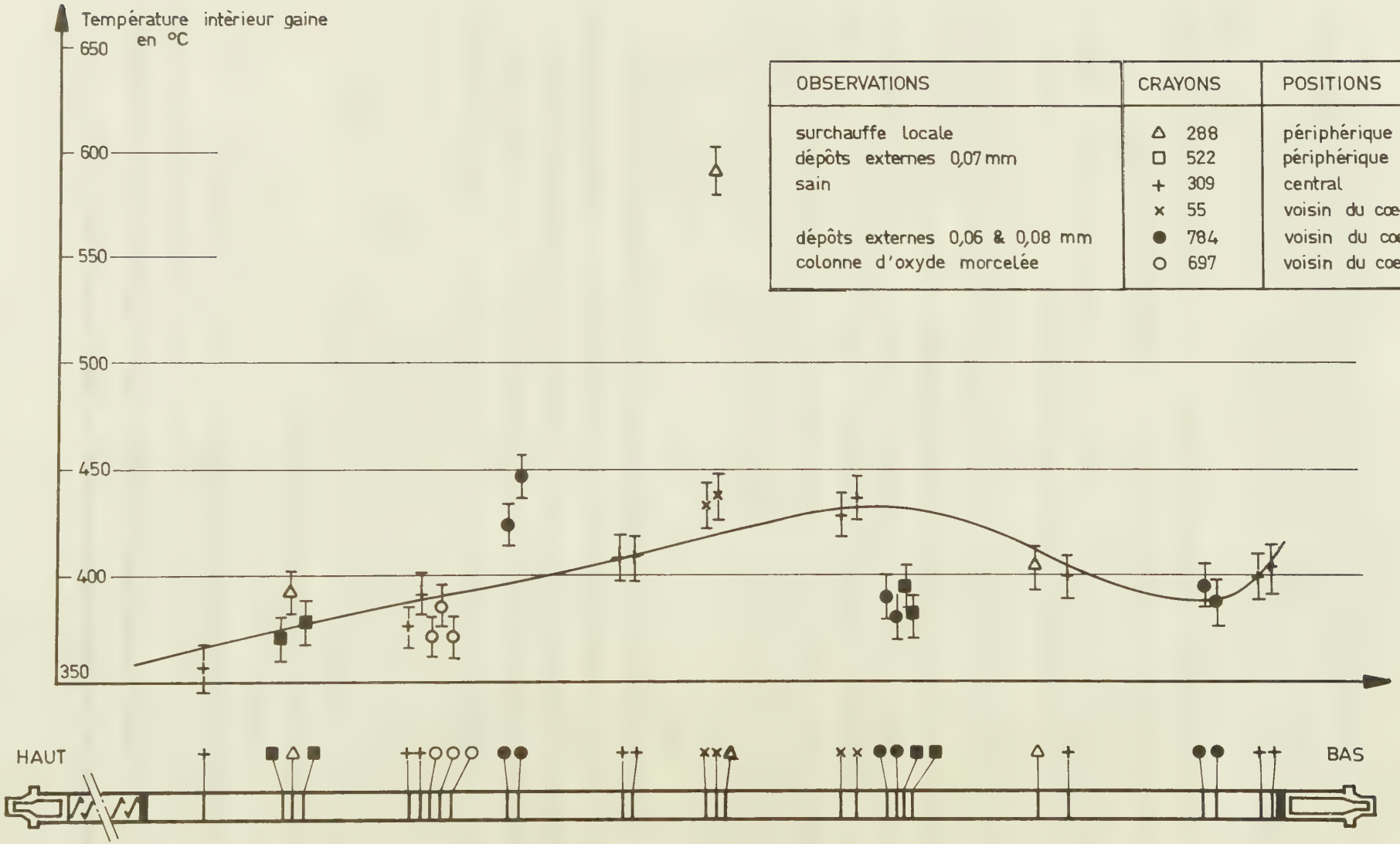
2°- Eléments voisins du centre du coeur du réacteur

Au centre du coeur la densité neutronique est maximum, les crayons irradiés dans cette zone ont une puissance linéïque supérieure à celle du crayon de référence, leur température est en fait légèrement plus élevée que celle de l'élément de référence. La température mesurée au milieu de la colonne fissile sur un crayon proche du centre est de 440 $\pm$ 20°C, donc légèrement supérieure à la température du même emplacement du crayon de référence (420 $\pm$ 20°C), ce qui correspond à leur différence de puissance linéïque.

L'examen en neutronographie d'un autre crayon irradié dans cette zone a montré une colonne d'oxyde d'uranium très morcelée dans sa partie supérieure, ce qui a été confirmé par l'examen micrographique (figure 33). Trois prélèvements ont été éffectués dans la gaine au niveau d'un morcellement important avec accrochage de l'oxyde sur la gaine par l'intermédiaire d'un couche de réaction. La moyenne des températures déterminées sur ces échantillons est identique à la moyenne des températures mesurées au même emplacement dans le crayon de référence. Il semblerait donc que ce morcellement se soit produit postérieurement à la croissance de la couche de zircone qui a une épaisseur de 5 à 10 microns à cet endroit.

3°- Eléments avec dépôts sur la gaine

On pense que ces dépôts externes se forment sur des parties mal refroidies de certains crayons, ce qui devrait correspondre à des températures intérieur-gaine

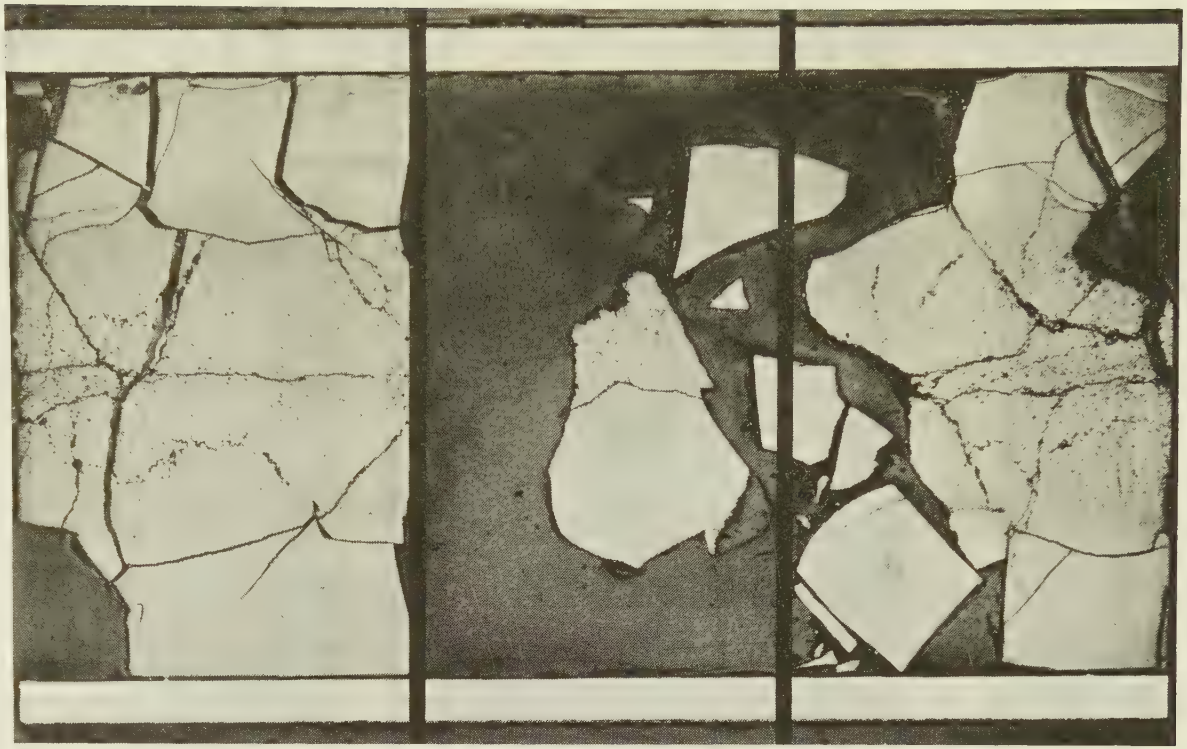


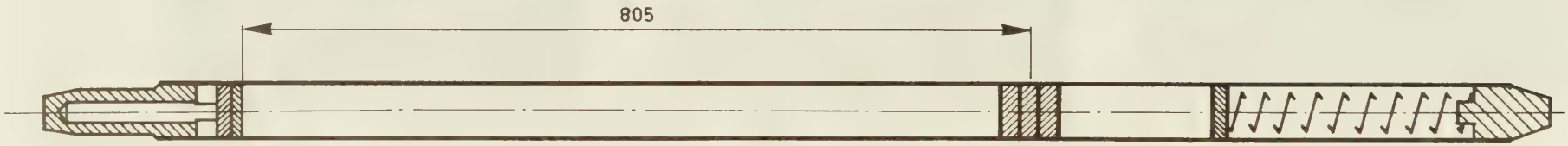
OBSERVATIONS	CRAYONS	POSITIONS
surchauffe locale	△ 288	périphérique
dépôts externes 0,07 mm	□ 522	périphérique
sain	+ 309	central
	× 55	voisin du cœur
dépôts externes 0,06 & 0,08 mm	● 784	voisin du cœur
colonne d'oxyde morcelée	○ 697	voisin du cœur

PROFIL THERMIQUE COMMUN AUX SIX CRAYONS DE L'ASSEMBLAGE

FIG. 32

CRAYON 697





ACCROCHAGE ET DÉFAUT DE COMBUSTIBLE DANS LA GAINE

FIG. 33

plus élevées que pour les parties saines. Ces dépôts sont constitués de produits de corrosion du circuit primaire de refroidissement, l'analyse révèle : du fer, du cuivre, du nickel, du bore, de l'uranium et de la zircone.

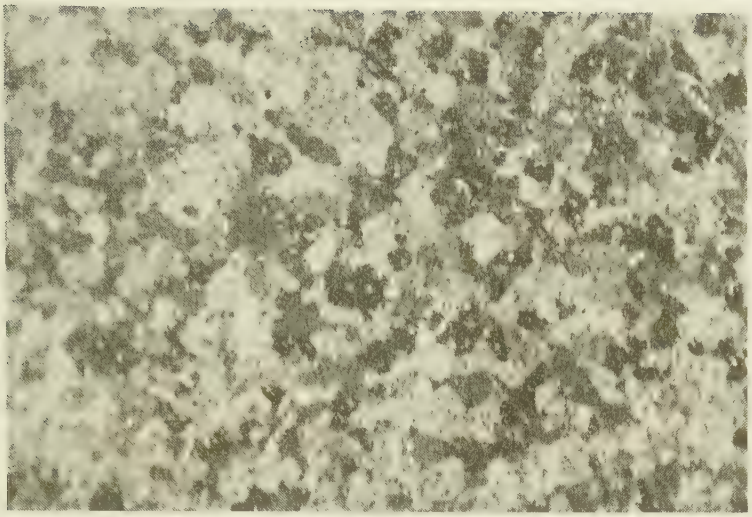
Les prélèvements pour mesure de températures ont été effectués au niveau de ces dépôts, mais aussi en d'autres points afin de constater l'influence éventuelle sur la température intérieur-gaine. L'épaisseur de ces dépôts varie de 0,06 à 0,08 mm sur les deux crayons examinés.

Les mesures de température faites sur ces deux crayons, l'un irradié en périphérie de l'assemblage et l'autre voisin du centre du coeur, montrent que les dépôts ont une influence très nette sur la température intérieur-gaine de ces crayons. En effet, pour un même crayon les températures mesurées s'écartent tantôt de + 50°C, tantôt de - 60°C de la température "normale" correspondante de l'élément de référence.

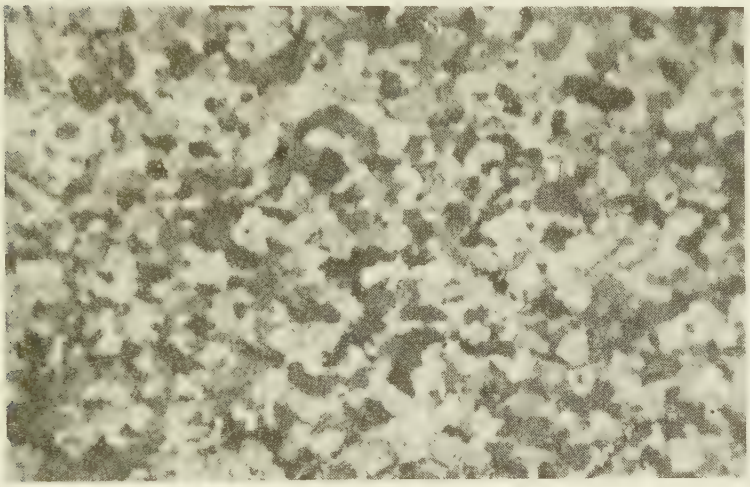
4°- Elément localement surchauffé

Une recristallisation locale de la gaine a été observée micrographiquement au niveau d'un défaut externe présentant une couche de zircone importante. La recristallisation du zircaloy indique un passage de l'alliage à une température supérieure à 550°C [32]. La figure 34 montre cette recristallisation sur toute la périphérie de l'échantillon de gaine utilisé pour la mesure de température. On a pris soin de vérifier que cette recristallisation s'était produite dans toute la masse de l'échantillon en effectuant une micrographie sur la face opposée de celui-ci.

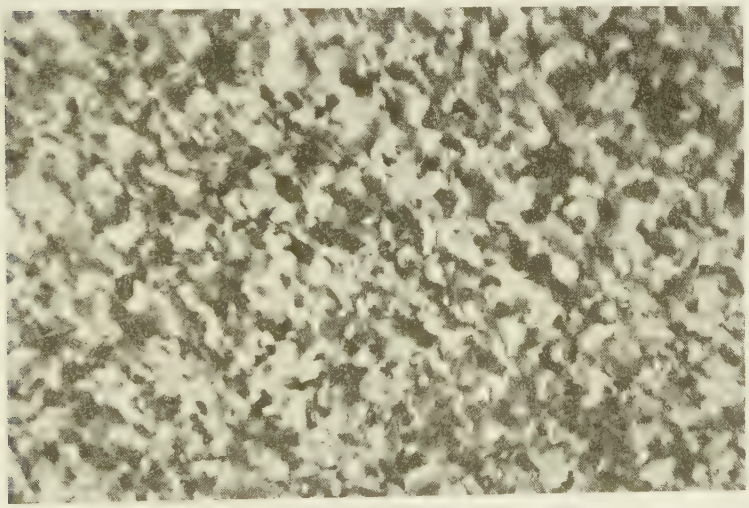
La température mesurée est de 590 $\pm$ 20°C ce qui confirme bien la surchauffe au-delà de 550°C supposée. Des mesures effectuées sur des tronçons du même crayon, mais dans des zones ne présentant pas de recristallisation du zirconium, ont donné des températures normales, ce qui prouve que la surchauffe est localisée au niveau du défaut et pourrait être à son origine, s'il s'est produit une "ébullition par film de vapeur" entraînant une corrosion accélérée de la gaine.



Prés du défaut externe x 400



A l'opposé du défaut x 400



Structure normale du Zy x 400

STRUCTURE DE LA GAINE DE L'ELEMENT LOCALEMENT SURCHAUFFE

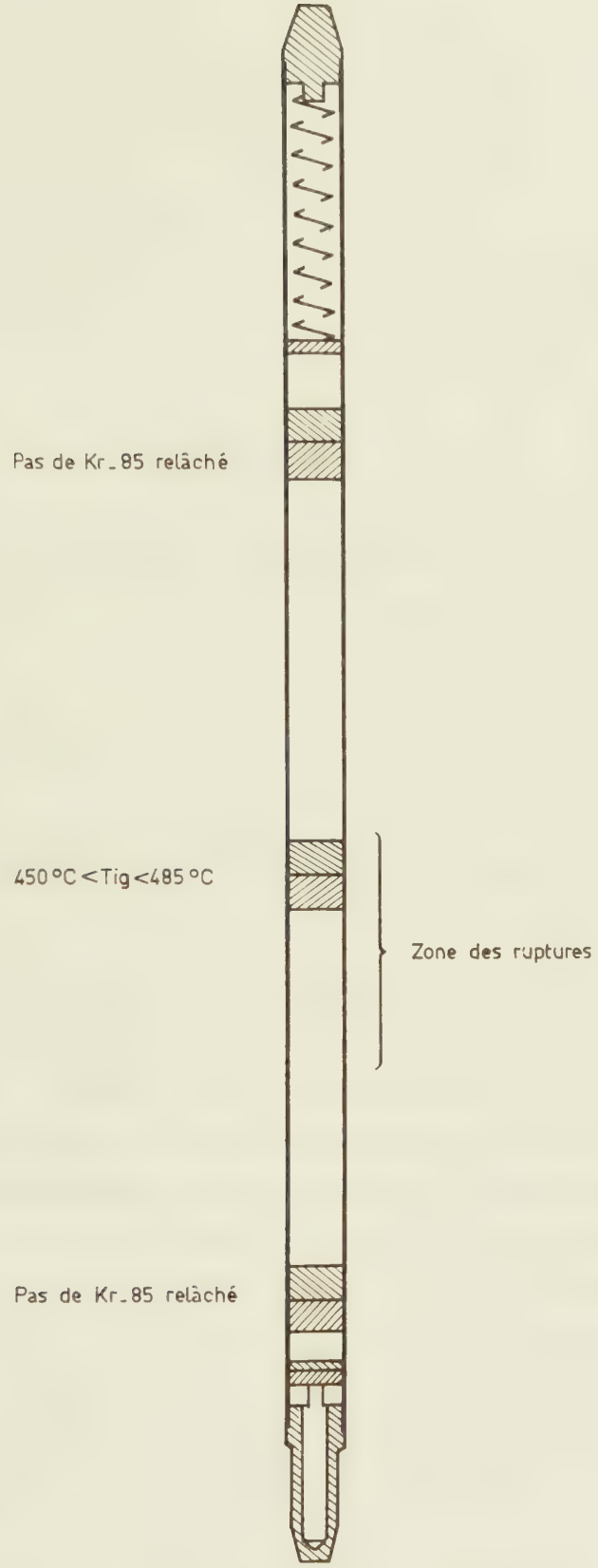
FIG. 34

IV.7 - DETERMINATION DE LA TEMPERATURE AU NIVEAU D'UNE RUPTURE DE GAINE

Une rupture de la gaine d'un crayon est survenue après quelques semaines de séjour dans le réacteur. Cette rupture n'a pas entravé la marche de celui-ci et a permis de poursuivre l'irradiation expérimentale.

Les examens métallographiques ont montré une importante hydruration de la gaine probablement amorcée avant rupture et continuée après rupture par pénétration de l'eau du circuit primaire de refroidissement entre la gaine et le combustible.

Des prélèvements ont été effectués aux deux extrémités du crayon et près de la zone des ruptures. Les quatre échantillons prélevés aux extrémités de la colonne fissile n'ont pas relâché de krypton 85 au cours du recuit de mesure, tandis que les deux échantillons situés à proximité de la zone des ruptures de gaine ont relâché une faible quantité de krypton 85 pour 450°C et 485°C (figure 35). Un rapprochement s'impose entre ce résultat et le cas de la surchauffe locale survenue à l'un des crayons de l'irradiation expérimentale de longue durée ; cette rupture de gaine s'est produite par corrosion (hydruration) interne de la gaine (l'hydrogène provenant d'un mauvais étuvage ayant laissé des solvants organiques). La corrosion s'est développée dans une partie plus chaude du crayon et la croissance de la couche de corrosion a augmenté la résistance thermique, ces deux facteurs s'amplifiant mutuellement jusqu'à la rupture. La mémoire de cette surchauffe locale et momentanée s'est conservée au-delà d'une couche de corrosion jouant le rôle de barrière aux produits de fission.



PLAN DE COUPE ET RÉSULTATS DU CRAYON D 183_C3

FIG. 35

CHAPITRE V

DISCUSSION DES RESULTATS

V.1 - MODELE DE RETENTION ET DE RELACHEMENT DU KRYPTON PAR LE ZIRCALOY

Nous avons vu plus haut (cf. IV.1) que le dégagement du krypton se fait à une température qui dépend étroitement de la température d'irradiation. Ce fait expérimental suggère que, au cours de l'irradiation, les atomes de gaz se sont piégés sur des "puits" de profondeurs diverses : les moins profonds se sont dépeuplés au fur et à mesure qu'ils se peuplaient, alors que les plus profonds conservaient leurs atomes piégés. Plus précisément, dans le spectre des énergies de piégeage disponibles, il existe pour une température T_o et un temps t d'irradiation donnés une énergie seuil E_o (T_o, t) telle que tous les pièges d'énergie $E < E_o$ (T_o, t) sont pratiquement vides à la fin de l'irradiation, alors que les pièges plus profonds ($E > E_o$ (T_o, t)) ont pratiquement retenu les atomes de gaz qui les ont peuplés. Il est raisonnable d'admettre, pour nos irradiations, que le temps joue un rôle bien moins important que la température et nous postulerons que l'énergie seuil E_o ne dépend pratiquement que de la température T_o d'irradiation.

Si l'idée simple que nous venons de décrire est vraie, la situation dans le métal, à la fin de l'irradiation à la température T_o est la suivante : les No atomes de krypton implantés dans la gaine sont,

- pour la majorité, piégés dans des puits d'énergie supérieure à E_o (T_o)
- pour quelques uns, soit libres dans le réseau, soit piégés dans des puits peu profonds (Fig. 36).

Lorsque nous réchauffons la gaine après irradiation, il est clair que, tant que la température est inférieure à T_o, seuls les quelques atomes de gaz peu piégés peuvent sortir ; lorsque la température atteint puis dépasse T_o, les pièges d'énergie supérieure à E_o commencent à se dépeupler. La "mémoire" de la température d'irradiation est alors directement reliée à l'énergie E_o.

Il est très probable que les "pièges" dont nous venons de parler sont constitués par les défauts d'irradiation. La complexité de ceux-ci - défauts ponctuels, petits amas, boucles de dislocation de tailles diverses, éventuellement cavités (Fig. 37) - doit normalement donner lieu à un spectre d'énergie de piègeage assez large.

1°) Imaginons dans un premier temps, et pour simplifier, que tous les atomes de krypton piégés le sont dans un piège d'énergie E_o. En supposant que tout atome dépiégé sort, après diffusion, du métal sans retomber dans un autre piège, nous voyons que le nombre d'atomes de krypton dN sortant du métal pendant le temps dt à la température de recuit T, est en première approximation :

$$dN = \nu\, (N_o - N)\, \exp - \left(\frac{E_o}{kT}\right) dt \qquad 1$$

où N est le nombre d'atomes de krypton sortis au temps t et une fréquence de vibration.

Dans nos expériences la montée en température du four est linéaire $(T = 2t + 273)$ avec t en minutes. L'équation 1 devient :

$$dN = \nu\, (N_o - N)\, \exp - \frac{E_o}{k\,(2t + 273)}\, dt \qquad 2$$

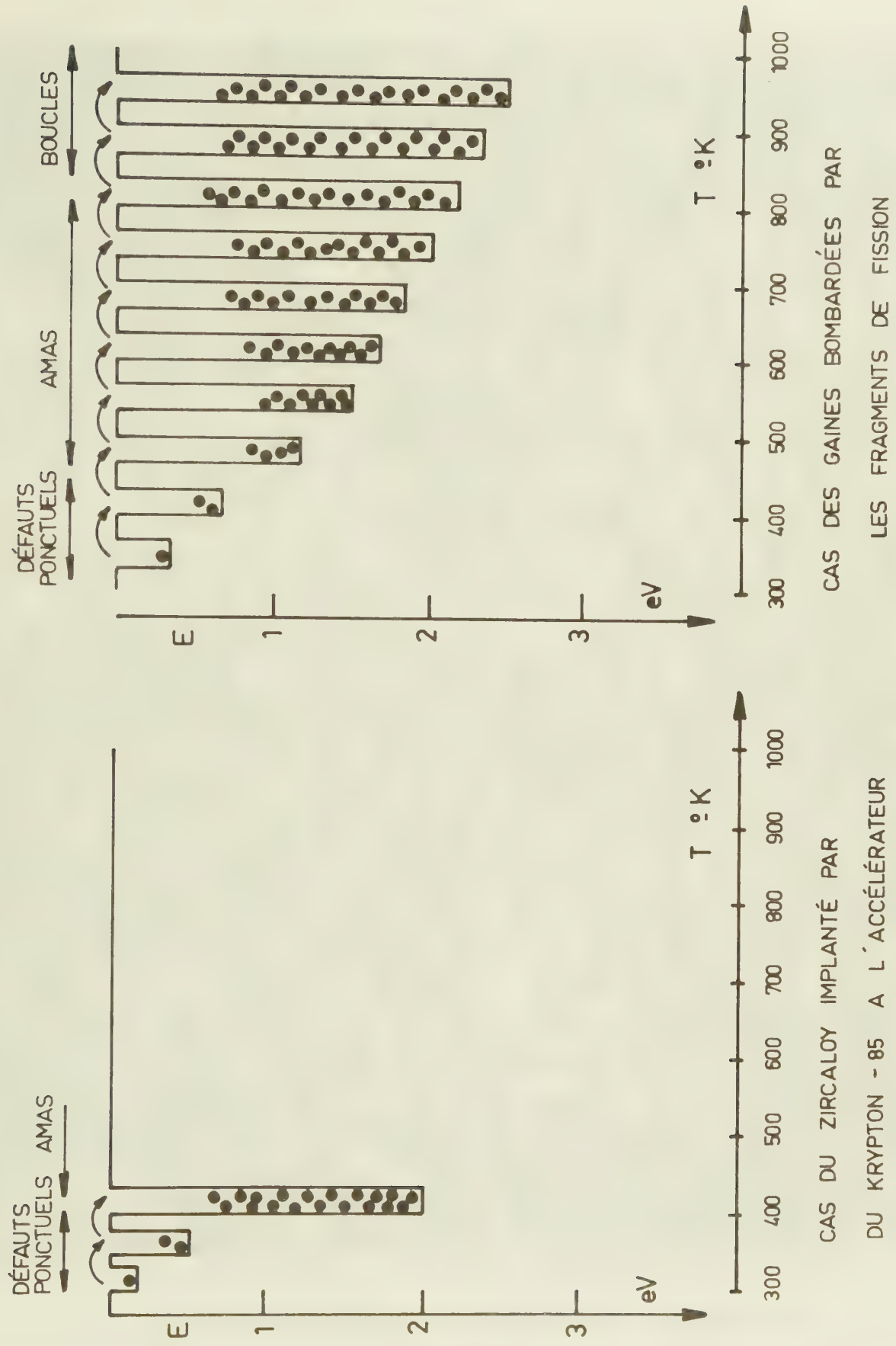
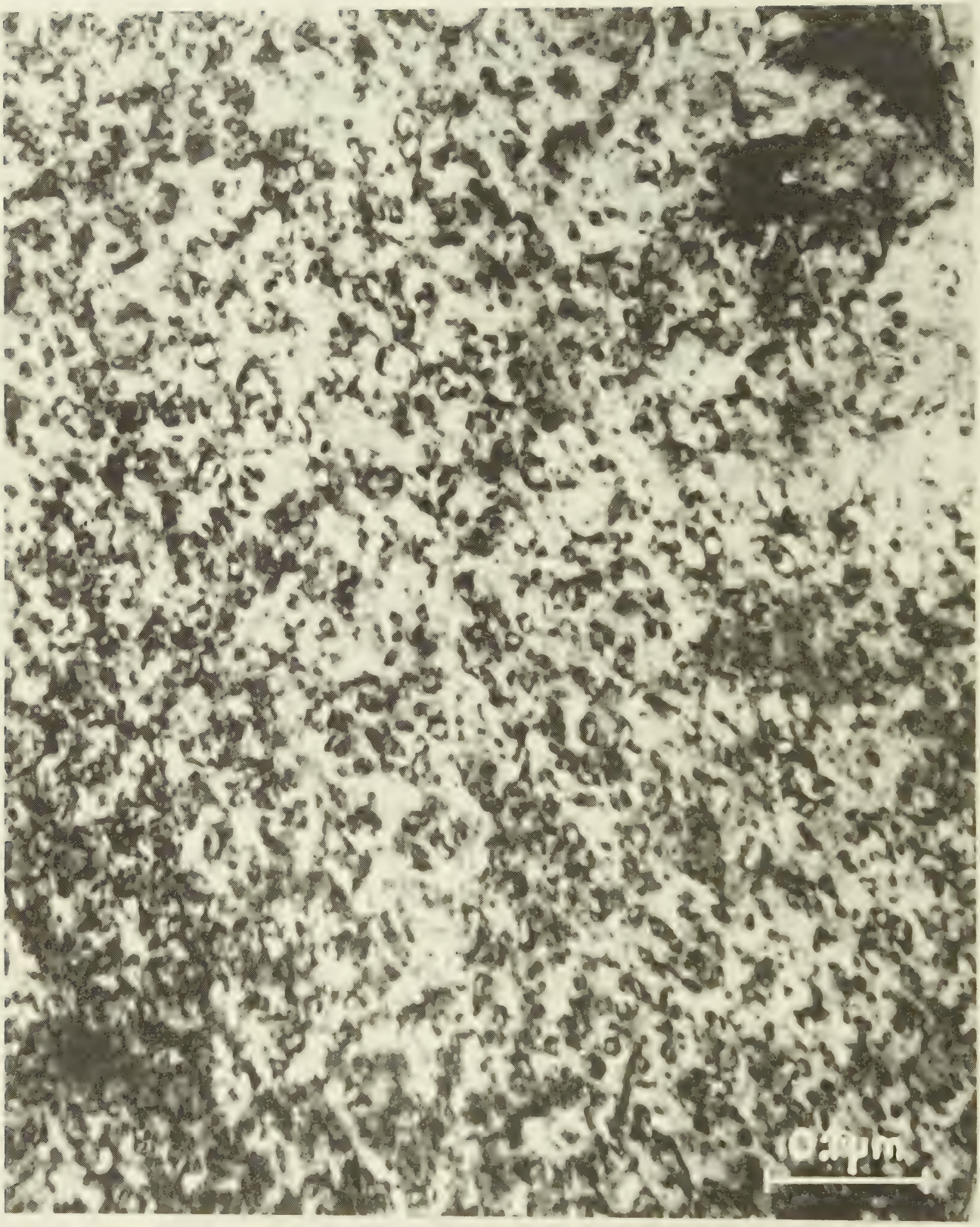

DÉFAUTS PONCTUELS
AMAS
BOUCLES
E
1
2
3
eV
T °K
300
400
500
600
700
800
900
1000
CAS DES GAINES BOMBARDÉES PAR LES FRAGMENTS DE FISSION
CAS DU ZIRCALOY IMPLANTÉ PAR DU KRYPTON - 85 A L'ACCÉLÉRATEUR

FIG. 36



Boucles dans du zircaloy irradié par des neutrons rapides.

FIG. 37

Cette équation différentielle a été résolue numériquement dans le cas des implantations à l'accélérateur SAMES (c.f. IV.3 et annexe II). On constate sur la figure 38 que, en prenant $\nu = 10^{13}\ s^{-1}$ (30) et $E_o = 2$ eV, ce modèle très simple donne une description raisonnable des résultats expérimentaux.

2°) Si maintenant nous prenons en compte l'existence d'un spectre discret d'énergies E_i de pièges de nombre n_i, nous sommes amenés à écrire pour chaque piège :

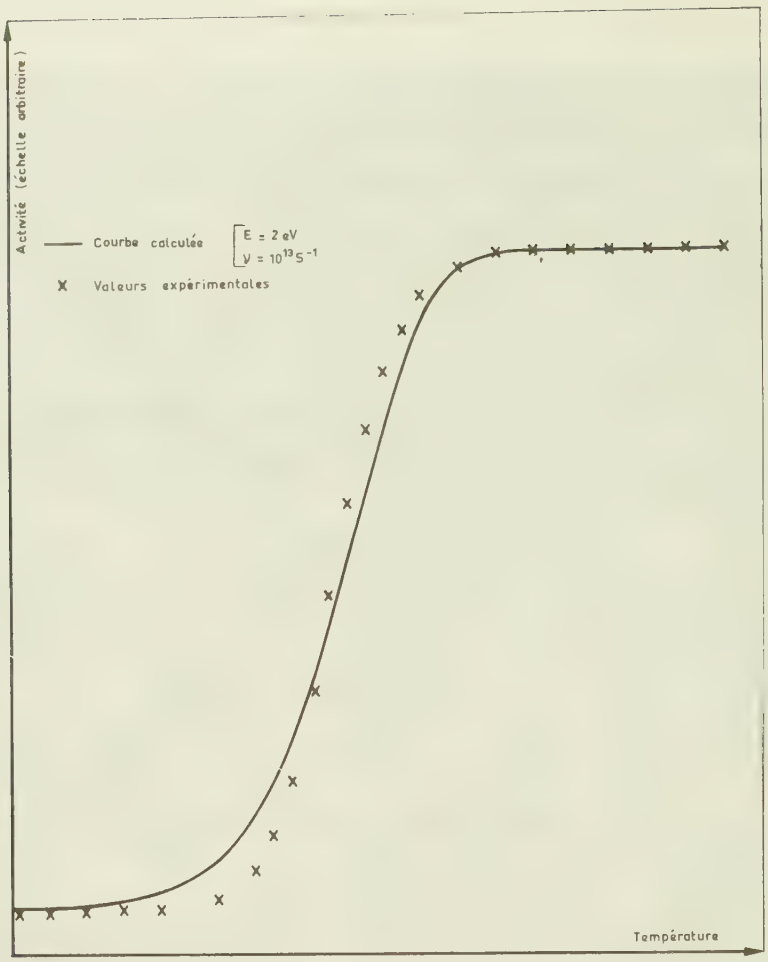
$$dN_i = \nu (N_o i - N_i) \exp\left(-\frac{Ei}{kT}\right) dt$$

et donc au total :

$$dN = \nu \sum_i n_i (Ni_o - N_i) \exp\left(-\frac{Ei}{kT}\right) dt \qquad 3$$

Dans la méconnaissance absolue où nous sommes des valeurs possibles de n_i, $N_o i$ et E i l'exploitation numérique d'une telle équation serait absolument illusoire. Cependant, dans le cas des gaines de l'irradiation de longue durée (c.f. IV.6), un calcul des énergies d'activation mises en jeu durant le relâchement semble montrer l'existence d'un tel spectre : les énergies d'activation augmentent régulièrement au fur et à mesure que la température de recuit croît (voir annexe III et fig. 39).

3°) Il subsiste un problème délicat : celui de la manière dont nous devons extraire, à partir des courbes expérimentales de relâchement, la température d'irradiation T_o. Dans le modèle simple précédent (§ 2) nous voyons que cette température correspond au début du relâchement, conformément à ce que nous avons dit au chapitre IV.1. Cependant une détermination plus théorique de T_o reste difficile. En effet la courbe de relâchement ne dépend évidemment pas que de T_o : elle dépend du temps d'irradiation, de la façon dont les puits se sont formés au cours du temps, etc... Il faudrait donc, pour résoudre ce problème posséder, en même temps qu'une



COMPARAISON ENTRE COURBE CALCULÉE ET VALEURS EXPÉRIMENTALES

FIG. 38

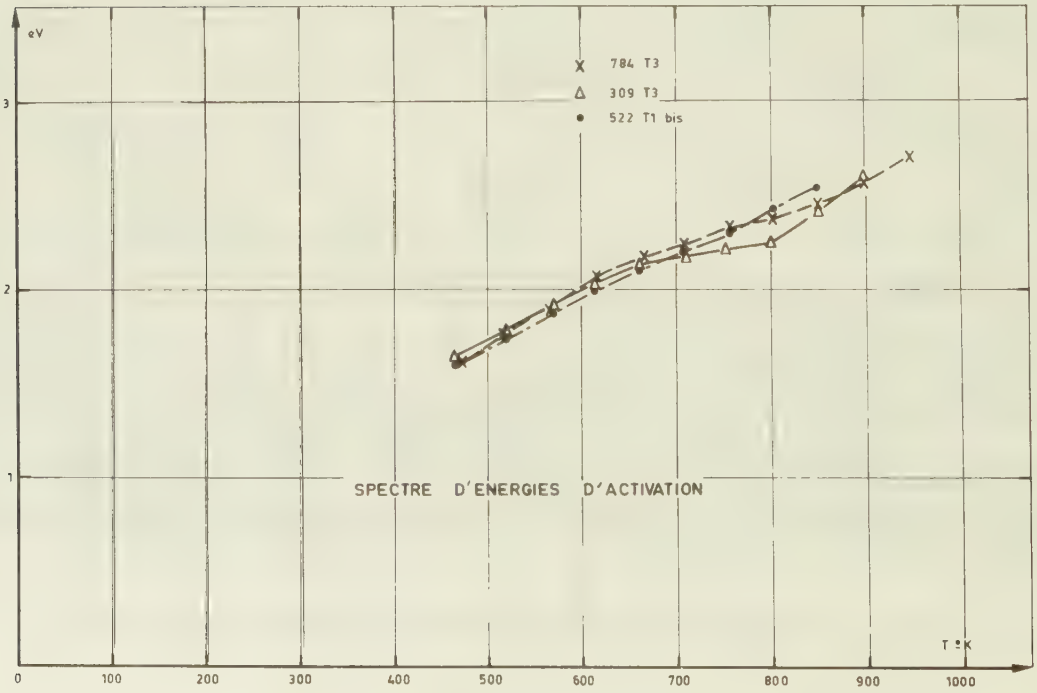


FIG. 39

équation de relâchement du type 2 ou 3 , une équation de piégeage permettant de connaître notamment les quantités de gaz piégés $N_o i$. Si l'on songe que les pièges eux-mêmes (donc les énergies $E_o i$) varient au cours de l'irradiation, on comprend que l'on a là affaire à un problème actuellement inabordable sur le plan théorique, du moins dans le cas d'irradiations technologiques.

V.2 - A QUEL MOMENT DE L'IRRADIATION CORRESPOND LA TEMPERATURE DETERMINEE PAR CETTE METHODE ?

Nous vons vu à propos des résultats de l'irradiation de longue durée que le profil de température de ces éléments semble lié au profil de flux (donc de puissance) du début de l'irradiation. Ces résultats amènent la question suivante :

A quel moment de l'irradiation la température déterminée par dégagement de krypton 85 correspond-t-elle ?

V.2.1 - Estimation de la période de mémoire de la température

Puisque le bombardement de la gaine par les fragments de fission déplace les atomes de krypton de leurs sites de capture et leur permet ainsi de migrer dans des sites d'énergie compatible avec la température d'irradiation instantanée, on peut définir une "période de mémoire" de la température sous irradiation comme étant le temps nécessaire au déplacement de la moitié des atomes du réseau par le flux de fragments de fission, ainsi que SWANSON l'a proposé (20) . Le flux de

fragments de fission reçus par la gaine n'est pas aisé à estimer, mais il est fonction de la puissance thermique développée par l'élément combustible et de l'épaisseur de la couche de zircone entre UO_2 et gaine.

Le détail du calcul est présenté en annexe IV, nous n'en retiendrons ici que le résultat final qui exprime la période t (en heures) en fonction de la puissance linéïque P et de l'épaisseur de la couche de zircone e (le parcours des fragments de fission étant prix égal à 9 microns).

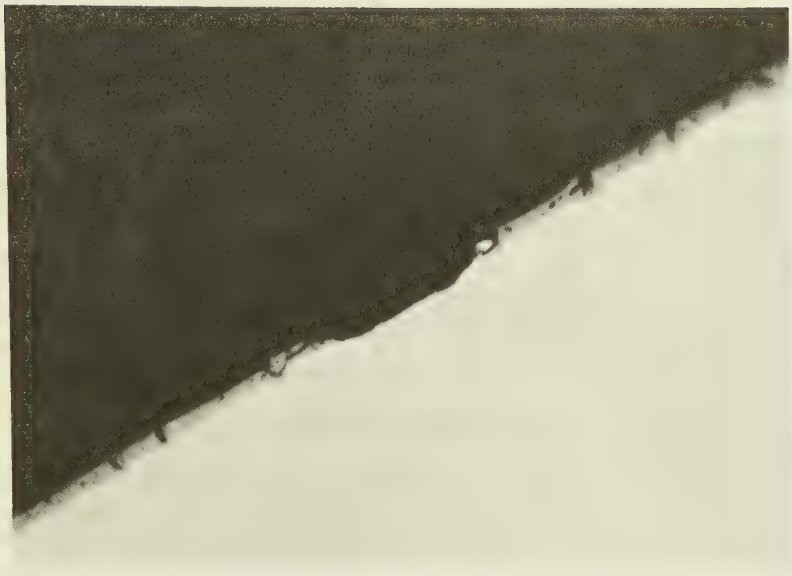
$$t = \frac{4085}{(1 - \frac{e}{9})\, P}$$

A l'aide de cette formule, nous avons tracé un abaque (fig. 41) qui donne la période t pour des couches de zircone d'épaisseur inférieure ou égale à 8 microns dans la gamme de puissance 10 à 800 $W.cm^{-1}$.

V.2.2 - Evaluation expérimentale du temps de mémoire par réirradiation dans la pile TRITON

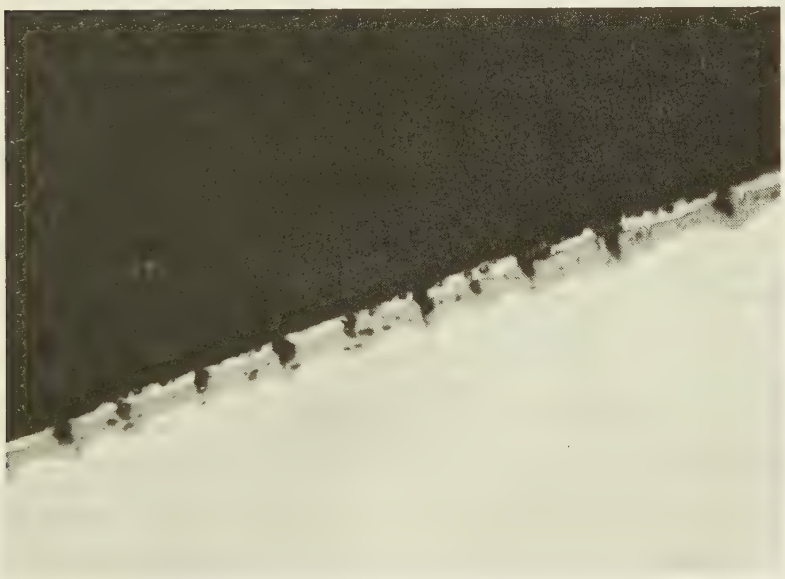
(Irradiation DETROIT : Détermination Expérimentale du Temps de Ré-Organisation par Irradiation dans Triton).

L'élément de référence de l'irradiation de longue durée utilisé pour cette réirradiation présente une couche de zircone dont l'épaisseur varie de 5 à 10 microns soit en moyenne 7,5 microns (fig. 40).



Absence locale de
la couche de zircone

x 400



Couches de zircone et
de réaction oxyde-gaine

x 400

ASPECT DE LA COUCHE DE ZIRCONE A L'INTERIEUR
DE LA GAINE DE L'ELEMENT DE REFERENCE

FIG. 40

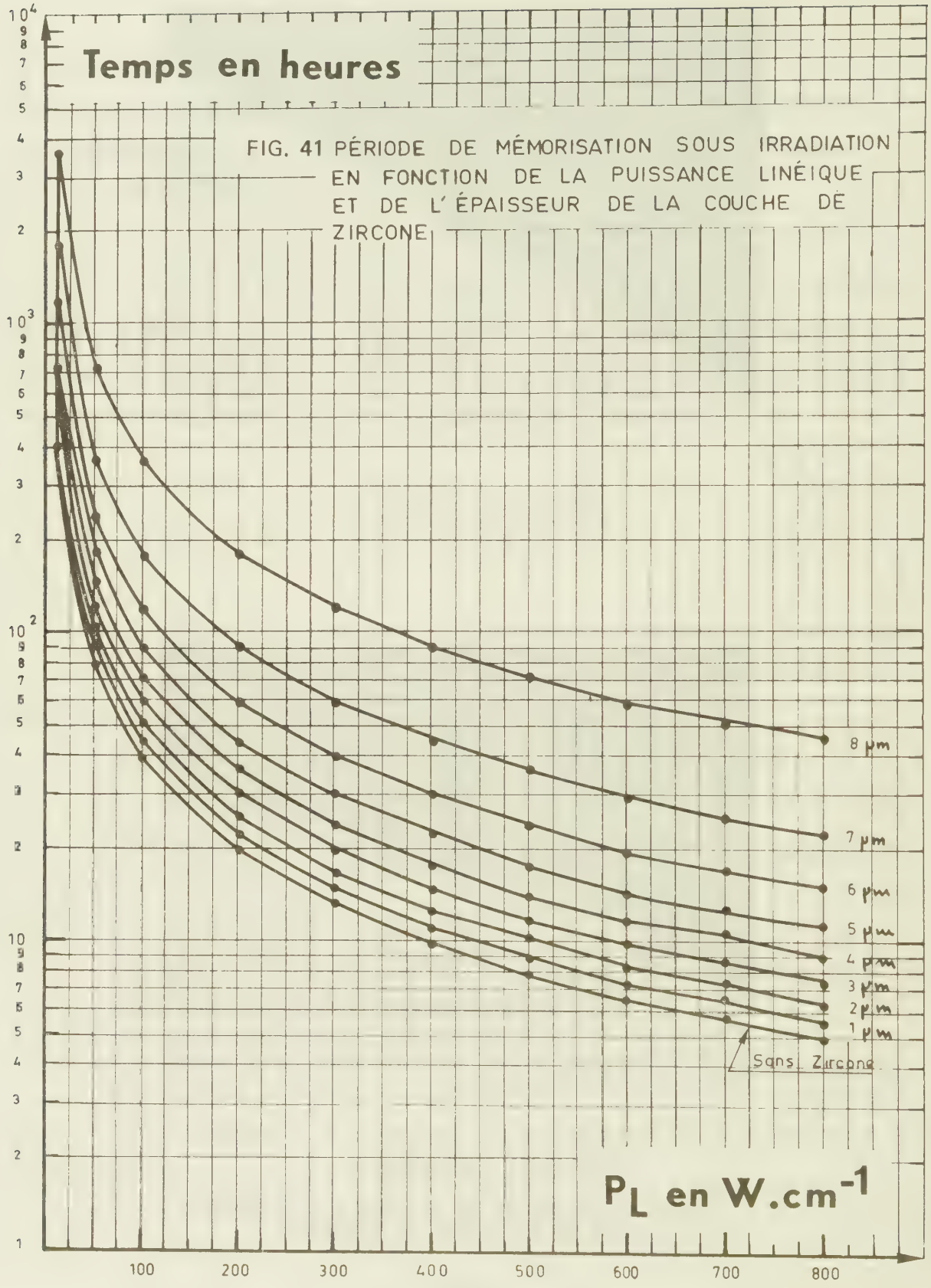


FIG. 41 PÉRIODE DE MÉMORISATION SOUS IRRADIATION EN FONCTION DE LA PUISSANCE LINÉIQUE ET DE L'ÉPAISSEUR DE LA COUCHE DE ZIRCONE

L'application de la formule précédente, avec cette couche de zircone, donne un temps de mémoire de 50 heures.

V.2.2.1 - But de l'irradiation DETROIT

Afin de démontrer expérimentalement l'influence de la couche de zircone sur le temps de mémoire de la température, nous avons réalisé cette irradiation qui consiste à réirradier des tronçons de l'élément de référence à une température plus basse que dans le PWR et de déterminer ensuite la température intérieur-gaine de ces tronçons :

- si l'on retrouve la température initiale 430°C (température intérieur-gaine dans le PWR) c'est que la couche de zircone arrête les fragments de fission et empêche la réorganisation des dommages créés à cette température,

- par contre, si l'on trouve 200 °C (température de réirradiation dans TRITON) c'est que la réorganisation s'est effectuée et que l'expression permettant d'évaluer t, est applicable à ce cas,

- une troisième possibilité est à envisager c'est que l'on retrouve à la fois 430°C et 200°C, compte tenu que la couche de zircone a une épaisseur variable de 5 à 10 microns (et même rarement une absence complète de cette couche comme le montre la figure précédente (figure 40). Dans ce cas la formule donnant t en fonction de la puissance linéïque et de l'épaisseur de la couche de zircone serait vérifiée expérimentalement.

V.2.2.2 - Préparation de l'irradiation DETROIT

Il serait judicieux de réirradier un morceau d'élément combustible irradié sans couche de zircone et un autre avec une couche de zircone d'épaisseur supérieure à 9 microns. Malheureusement, cette vue théorique n'est pas réalisable avec les éléments combustibles dont nous disposons. Nous avons donc été contraint de réirradier

deux tronçons de l'élément combustible de référence tel qu'il est, c'est-à-dire avec une couche de zircone de 5 à 10 microns d'épaisseur. Ces tronçons portent les numéros 1 et 2 sur la figure 42 .

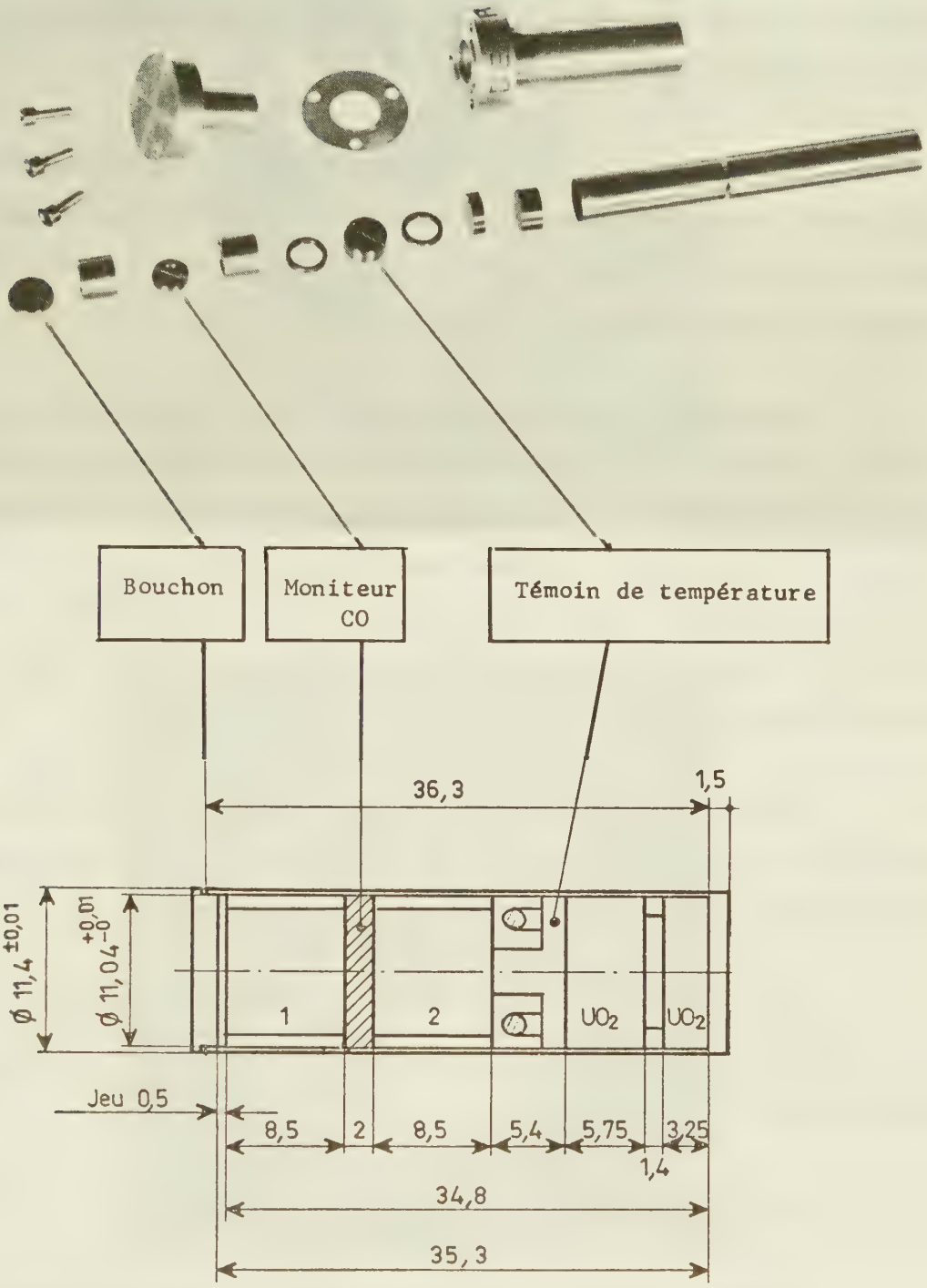
La combustion massique initiale de ces deux prélèvements étant de 20 000 MWj/t U, leur radioactivité est telle que pour des raisons de sécurité il a été nécessaire de réaliser une double étanchéité pour l'irradiation dans TRITON. Nous avons utilisé un premier conteneur en zircaloy 2 obturé par une pastille soudée sous argon. Ce conteneur a été testé à l'hélium, le procès verbal de contrôle indique un taux de fuite inférieur à 2.10^{-9} at.cm^3.sec^{-1}. Ce premier conteneur est placé dans un second en alliage d'aluminium (AG 3) dont l'étanchéité est réalisée par un joint métallique (figure 42). Cette étanchéité a été contrôlée par un test à bulle avant l'immersion dans la piscine de TRITON.

Pour contrôler "a posteriori" la fluence et la température en cours d'irradiation nous avons disposé les indicateurs suivants :

1°- Un moniteur intégrateur de flux, constitué par une pastille d'alliage d'aluminium et de cobalt. Le cobalt 59 inactif se transforme en cobalt 60 (émetteur γ) par capture neutronique. La quantité de Co 60 formée est proportionnelle à la fluence. Une seule mesure d'activité γ permet donc de connaître le flux neutronique intégré au niveau du moniteur.

2°- Des témoins de température (figure 43) constitués de fragments de métaux et d'alliages à point de fusion connus, qui sont :

- alliages de Darcey - point de fusion	93°C
- alliage Cerotru (Sn-Bi)	138°C
- étain pur	232°C
- bismuth pur	271°C
- plomb pur	327°C



CONTENEUR D'IRRADIATION DÉTROIT

FIG. 42

Un examen visuel après irradiation permet de constater la fusion de l'un ou plusieurs de ces témoins et d'en déduire la température maximale atteinte dans cette zone durant l'irradiation.

3°- Deux pastilles d'oxyde d'uranium enrichi à 3,05 % dans le double but d'homogénéiser la température de l'empilement expérimentale et d'éventuellement permettre de déterminer la température du conteneur en zircaloy 2 par relâchement du krypton 85 implanté pendant la réirradiation.

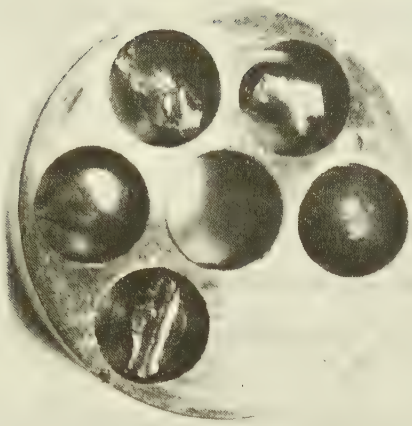
Le plan d'empilement des divers constituants de cette réirradiation est donné figure 42 . Le tronçon n° 1 et les pastilles d'oxyde d'uranium enrichi à 3,05 % sont disposés à chaque extrémité du conteneur de manière à obtenir un flux homogène sur le tronçon n° 2 et par suite une meilleure répartition de la température dans la zone centrale de l'empilement. De par cette disposition le tronçon le plus chaud et le plus irradié est le tronçon médian (n° 2), c'est pourquoi il est placé entre l'intégrateur de flux et les témoins de température.

Le tronçon n° 1 est moins chaud que les pastilles d'UO_2 à 3,05 % parce que son taux d'enrichissement résiduel est de l'ordre de 2 % (4 % à l'origine diminué de 2 % fissionnés - voir Tableau I - pour 20 000 MWj/t d'U^5).

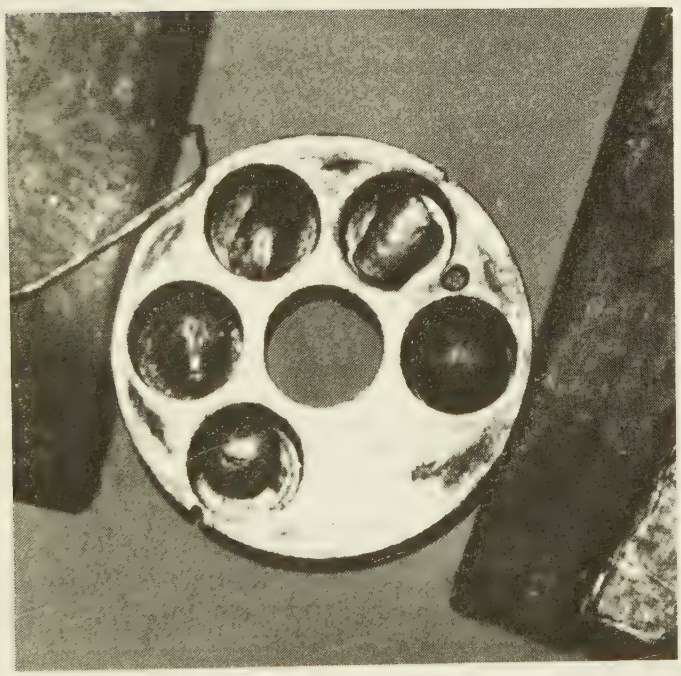
Généralement, les produits de fission volatils tels que les césiums migrent vers les zones les plus froides, c'est donc au niveau du tronçon n° 1 (près du bouchon du conteneur) que vont se rassembler ces produits.

V.2.2.3 - L'irradiation

Le calcul neutronique et thermique de cette réirradiation effectué par le Service des Piles de Saclay [33], [35] conduit aux paramètres d'irradiation suivants :



avant irradiation x 5



après irradiation x 5

BOITIER DES TEMOINS DE TEMPERATURE

FIG. 43

- température intérieur-gaine : 200 ± 50°C
- température du conteneur en Zy : 100°C
- température du conteneur aluminium : 60°C

Cette dernière température est imposée par le fait que le refroidissement de ce conteneur n'est assuré que par la convection naturelle de l'eau de la piscine TRITON, il ne faut en aucun cas 100°C sur le conteneur pour éviter l'ébullition (perturbation du flux par les bulles de vapeur).

La température imposée de 200 ± 50°C à l'intérieur de la gaine limite la puissance linéïque à 10 W/cm ce qui correspond à un flux instantané de $2,3.10^{12}$ $n/cm^2/s$; ce flux est celui de l'emplacement 88 de la périphérie du coeur TRITON.

Le temps de réirradiation est calculé de la manière suivante : pour obtenir une période t avec une puissance de 500 W/cm dans le PWR il faut 50 heures d'irradiation (annexe IV) ; dans TRITON nous avons une puissance de 10 W/cm, dont pour avoir une période il faut 2 500 heures, soit 104 jours d'irradiation. Le flux intégré sera donc de 2.10^{19} n/cm^2. L'irradiation a débuté à l'arrêt le 26 Décembre 1973 et s'est poursuivie jusqu'au 15 Avril 1974 avec trois arrêts programmés de la pile.

V.2.2.4 - Résultats

La fluence thermique mesurée à l'aide du moniteur au cobalt est de $1,67.10^{19}$ n/cm^2 [34].

La température moyenne du conteneur en zircaloy indiquée par les témoins de température est comprise entre 93°C et 138°C (figure 43)

Le tableau suivant montre que la fluence et la température mesurées sont en bon accord avec les valeurs prévues par le calcul du S.P.S.

	Fluence $n/cm^2/s$	Température conteneur Zy
calculée	$2 \quad .10^{19}$	100°C
mesurée	$1,67.10^{19}$	93°C < t < 138°C

Pour confirmation éventuelle de la température du conteneur en zircaloy, il avait été prévu une détermination de cette température, par relâchement de krypton 85, sur une bague prélevée dans le conteneur au niveau des pastilles d'oxyde d'uranium enrichi à 3,05 %. Cette bague n'ayant pas libéré de krypton 85 au cours de son recuit post-irradiatoire, il n'est pas possible d'améliorer la précision sur la température du conteneur. Cette température de l'ordre de 100°C est la plus basse que nous ayons eu à déterminer, ce résultat négatif nous permet donc de penser que la limite inférieure de validité de la méthode se situe entre 100°C et 250°C.

Les tronçons de l'élément de référence réirradiés ont fourni les résultats suivants :

. Tronçon n° 1

Comme nous l'avons dit précédemment, les césiums (134 et 137) provenant de l'irradiation dans le PWR, ont migré vers ce tronçon situé à l'extrémité la mieux refroidie du conteneur. Cette contamination en césium trop importante pour être éliminée chimiquement (D_2HPA) et par la discrimination électronique, a masqué le krypton 85. En conséquence, la température n'a pu être déterminée sur ce tronçon.

. Tronçon n° 2

La courbe de relâchement du krypton 85 de la gaine de ce tronçon présente deux pentes caractéristiques, l'une indiquant 250 $\pm$ 20°C et l'autre 440 $\pm$ 20°C (figure 44)

COURBE DE RELACHEMENT DU KRYPTON-85 DE LA GAINE DU TRONÇON N°2 DE L'IRRADIATION DETROIT.

FIG. 44

La troisième hypothèse, exposée dans le but de cette réirradiation se trouve donc confirmée ; à savoir que la couche de zircone par son épaisseur variable a protégé du bombardement des fragments de fission certaines zones de la gaine qui ont mémorisé la température dans le PWR, tandis que d'autres zones non protégées ont mémorisé la température de réirradiation dans TRITON.

V.2.2.5 - En résumé

Dans le cas d'une gaine non oxydée, la température déterminée par cette méthode correspond à la fin d'irradiation de l'élément combustible. Pour des combustions massiques supérieures à 15 000 MWj/tU une couche de zircone s'interpose entre le combustible et la gaine, dans ce cas la période d'irradiation relative à la température déterminée peut être évaluée avec la formule donnant la période de mémorisation t en heures :

$$t = \frac{4085}{(1 - \frac{e}{9})\ P}$$

Lorsque l'épaisseur de la couche est supérieure à 9 microns, cette expression donne un temps négatif, ce qui s'interprète physiquement de la manière suivante : quand la couche de zircone, qui croît en fonction du temps, atteint 9 microns, aucun fragment de fission ne la traverse et la température mémorisée par la gaine sera celle qui pré-existait avant que la couche de zircone atteigne cette épaisseur.

Cette double irradiation montre que la mémoire de la température est gardée au moins pendant une période t ; on peut donc raisonnablement admettre que la température déterminée par cette méthode correspond à un moment de l'irradiation de durée égale à une période, comptée soit à partir de la fin de l'irradiation, soit à partir de l'instant où l'épaisseur de la couche de zircone dépasse 9 microns.

CONCLUSION

Nous avons entrepris ce travail dans le but de déterminer expérimentalement la température de la face intérieure des gaines en zircaloy utilisées dans les réacteurs à eau pressurisée ; cette température étant une donnée du calcul de la chute thermique au contact combustible-gaine. Cet objectif atteint, nous avons appliqué la méthode à des cas où l'estimation de cette température est difficile, voire impossible, comme dans le cas d'une surchauffe locale sur un élément combustible.

L'influence de la couche de zircone qui se forme à l'intérieur de la gaine au cours de l'irradiation, a été étudiée :

- par simulation à l'accélérateur du bombardement de la gaine par les fragments de fission,
- par réirradiation dans la pile TRITON d'échantillons d'éléments combustibles expérimentaux irradiés dans un prototype de réacteur à eau pressurisée.

Le temps de mémoire de la température sous irradiation a été estimé en fonction de la puissance de l'élément combustible et de l'épaisseur de la couche de zircone qui se forme entre gaine et combustible pour les combustions massiques élevées.

On constate que la température est mémorisée avant que l'épaisseur de la couche de zircone n'atteigne 9 microns (parcours maximum des fragments de fission dans le zircaloy).

Pour des éléments combustibles dont l'histoire thermique sous irradiation est simple, la précision de cette méthode est de $\pm$ 20°C. Néanmoins cette précision est diminuée par les cyclages thermiques et influencée par la vitesse de refroidissement en fin d'irradiation.

Un modèle très simple de rétention et de relâchement du krypton, faisant intervenir l'énergie de piégeage du krypton dans le zircaloy, est proposé dans la discussion des résultats.

La qualité des résultats obtenus permet de ranger cette technique parmi les moyens de contrôle et d'expertise utilisables en Laboratoire de Haute Activité.

Il convient de retenir que le principal intérêt de cette méthode, actuellement appliquée en contrôle de routine au CEA, est de ne nécessiter aucune instrumentation de l'élément combustible.

BIBLIOGRAPHIE

[1] PANNETIER R.
Vademecum du Technicien - Contrôle des rayonnements ionisants.
Ed. C E A (1966) B. 110 - D. 3.

[2] MONIER J.
Détermination à l'aide des spectrométries α et γ du taux de combustion atteint par les combustibles nucléaires.
Rapport C E A R-4625 (1974).

[3] KATCOFF S.
Fission Product Yields from Neutron Induced Fission.
Nucleonics, Vol. 18, n° 11 (1960).

[4] ALAMI R., AGERON P.
Evacuation et récupération de la chaleur des réactions nucléaires.
Dunod (1958), p. 34.

[5] STORA J.P., de SIGOYER B., DELMAS R., DESCHAMPS P., LAVAUD B., RINGOT C.
Conductibilité thermique de l'oxyde d'uranium fritté dans les conditions d'utilisation en pile.
Rapport C E A R-2586 (1964).

[6] HUEBOTTER P.R.
Nuclear fuel burn-up lanversions.
Nucleonics, Vol. 18, n° 11 (1960).

[7] STORA J.P., CHENEBAULT P.
Programme Cyrano II.
Rapport C E A R-3618 (1968).

[8] JANVIER, de SIGOYER B., DELMAS R.
Irradiation d'oxyde d'uranium en gaine résistante. Effet du jeu diamétral sur le comportement global.
Rapport C E A R-3358 (1967).

[9] ROSS A.M., STOUTE R.L.
Heat transfert coefficient between UO_2 and zircaloy 2.
AECL 1552 (1962).

[10] THEVENET J.
Calcul de la chute de température au travers d'une plaque de zircaloy 2 recouverte en tout ou partie de ZrO_2.
Document interne C E A (1973).

[11] LAWRENCE L.A., HORN G.R., CHRISTENSEN J.A.
Fuel Clad gap conductance in fast reactor oxyde fuels.
A.N.S. Winter Meeting (1970), Vol. 13, n° 2.

[12] de HALAS D.R., HORN G.R.
Evolution of UO_2 structure during irradiation of fuel rods.
J.M.N., 8, n° 2 (1963).

[13] MAC EWAN J.R., LAWSON V.B.
Columnar grain growth.
Journal of American Ceramic Society, Vol. 45, n° 1 (1962).

[14] POTTER T.J., ELYARD C.A.
Columnar grain growth in UO_2.
British Ceramic Société, n° 7 (1967).

[15] CRAIG C.N., HALL G.R., BAILY W.E.
Heat transfert coefficients between fuel and cladding in oxyde fuel rods.
GEAP 5748 (1969).

[16] de CONTENSON G., DAILLE M.
Caractéristiques et données d'irradiation des crayons TOF.
Document interne CEA (1972).

[17] CHLECK D., MAEHL R., CUCCHIARA O.
Development of krypton 85 as a universal tracer.
USAEC. Parametries Inc., (1963), Waltham, Massachussetts.

[18] CUCCHIARA O., GOODMAN P.
Development of krypton 85 as a universal tracer.
USAEC. Parametries Inc., (1966), Waltham, Massachussetts.

[19] WISNIEFF S.F., BARDACH H.
A radioactive krypton diffusion technique for temperature mapping of turbine blade surfaces.
Society Automotiv Engineers (1965), 650-704.

[20] SWANSON K.M., BUTLER J.K., CLARKE D.
The determination of reactor fuel cladding temperature by recording krypton 85 release during post-irradiation heating.
J.M.N. (1969), 302-310.

[21] KRYGER B., BEAUFORT A.
Evaluation de l'importance des gaz de fission implantés par recul dans une gaine d'élément combustible irradiée en neutrons rapides.
Document interne CEA (1973).

[22] RIDER B.F., MEEK M.E.
Compilation of nuclear product yields.
NEDO 12 154. Vallecitos Nuclear Center (1972).

[23] FREMIOT C., BAZIN J., KRYGER B., GAYET B., JANVIER J.C.
Utilisation des isotopes radioactifs des gaz de fission comme moyen de mesure.
CEA Conf. 2054 ILNF.

[24] ZERBIB J.C., BONLEU M., IMBERT L.
Mesures de faibles quantités de gaz tritié. Application à la radioprotection.
IAEA Proceedings Series STI/PUB/289.

[25] LOTT M.
Implantation d'ions krypton 85 actifs dans une cible de zircaloy.
Document interne CEA (1972).

[26] de CONTENSON G., FIGNON M., MONIER J., HOUDAILLE B.
Examen après irradiation des crayons ELO 19 et ELO 20.
Document interne CEA (1971).

[27] VOGEL R.C.
Chemical Engineering Division Research High Lights.
A.N.L. 7850 (1971), p. 104.

[28] CANCE M.
Taux de déplacements atomiques dus aux produits de fission dans une gaine de combustible.
Document interne CEA (1973).

[29] VENDRYES G.
Génie atomique. Tome I. B. IX. I
PUF (1963).

[30] QUERE Y.
Défauts ponctuels dans les métaux.
Masson (1967), 61-62.

[31] KINCHIN G.H., PEASE R.S.
Rep. Progr. Phys. 18, 1, (1955).

[32] AZAM N., FRENKEL J.
Communication personnelle (1975).

[33] GILBERT J.
Réirradiation de tronçons de crayons UO_2 à TRITON.
Document interne CEA (1974).

[34] LE TANNO C.
Résultats d'un intégrateur de cobalt ayant monitoré l'expérience krypton 85.
Document interne CEA (1974).

[35] CANCE M., CHABRY P., GENTHON J.P.
Code SOURCE.
Document interne CEA (1973).

ANNEXE I

APPLICATION DU CALCUL DE LA TEMPÉRATURE INTÉRIEUR-GAINE À L'IRRADIATION EXPÉRIMENTALE DE COURTE DURÉE

- Données :

Température extérieur-gaine corrigée : 310°C

Puissance linéïque : 600 W/cm

Diamètre extérieur de la gaine : 1,516 cm

Epaisseur de la gaine : 0,04 cm

Température finale = température maximale

d'où $\Phi_R = \Phi$ théorique

- Calcul de la température intérieur-gaine :

Calcul de la densité de flux thermique sur gaine

$$\Phi_R = \frac{Q \cdot r}{2}$$

La puissance volumique est :

$$Q = \frac{q}{\pi \cdot r^2}$$

d'où

$$\Phi_R = \frac{q}{2\pi r} = \frac{600}{4,8} = 125 \text{ W/cm}^2$$

La température intérieur-gaine est :

$$T_{ig} = 310 + \frac{125 \times 0,04}{0,12 + (1,25.10^{-4} \times 310)} = 341°C.$$

ANNEXE II

PROGRAMME

```
PROGRAM FREM        76/76   OPT=1


                    PROGRAM FREM(OUTPUT,TAPE6=OUTPUT)
                    A=1.E13
                    DT=1.E1
                    T=999.
                5   X=6.4E-2
                    N=0
                1   DX=A*(1.-X)*EXP(-23638.68571/T)*DT
                    N=N+1
                    T=T+DT
               10   X=X+DX
                    IF(MOD(N,100).EQ.0) WRITE(6,100) T,X
              100   FORMAT(1H ,F10.1,5X,1PE15.7)
                    IF(T.LT.900.)GO TO 1
                    STOP
               15   END
```

RESULTATS

T	N	T	N	T	N	T	N
600.0	6.4170554E-02	642.0	7.8722746E-02	706.0	4.7164564E-01	770.0	9.9383399E-01
601.0	6.4145270E-02	643.0	7.9331247E-02	707.0	4.8537680E-01	771.0	9.9389004E-01
602.0	6.4225352E-02	644.0	8.1713570E-02	708.0	5.1237207E-01	772.0	9.9399393E-01
603.0	6.4318825E-02	645.0	8.1795673E-02	709.0	5.1341180E-01	773.0	9.9399637E-01
604.0	6.4402631E-02	646.0	8.2339655E-02	710.0	5.3447319E-01	774.0	9.9399788E-01
605.0	6.4433332E-02	647.0	8.4148756E-02	711.0	5.5073128E-01	775.0	9.9399878E-01
606.0	6.4533114E-02	648.0	8.5426365E-02	712.0	5.6715892E-01	776.0	9.9399932E-01
607.0	6.4713782E-02	649.0	8.6776120E-02	713.0	5.8372687E-01	777.0	9.9399963E-01
608.0	6.4831770E-02	650.0	8.8211420E-02	714.0	6.0044382E-01	778.0	9.9399980E-01
609.0	6.4837532E-02	651.0	8.8716425E-02	715.0	6.1715644E-01	779.0	9.9399990E-01
610.0	6.5191552E-02	652.0	9.1295159E-02	716.0	6.3334958E-01	780.0	9.9399995E-01
611.0	6.5234341E-02	653.0	9.2371521E-02	717.0	6.5074633E-01	781.0	9.9399997E-01
612.0	6.5336441E-02	654.0	9.4744184E-02	718.0	6.6730824E-01	782.0	9.9399999E-01
613.0	6.5543421E-02	655.0	9.6615601E-02	719.0	6.8419552E-01	783.0	9.9399999E-01
614.0	6.5723089E-02	656.0	9.8572508E-02	720.0	7.0076726E-01	784.0	1.0000000E+00
615.0	6.5804481E-02	657.0	1.0064583E-01	721.0	7.1718174E-01	785.0	1.0000000E+00
616.0	6.5929375E-02	658.0	1.0233069E-01	722.0	7.3339667E-01	786.0	1.0000000E+00
617.0	6.6307783E-02	659.0	1.0513239E-01	723.0	7.4936958E-01	787.0	1.0000000E+00
618.0	6.6528059E-02	660.0	1.0736644E-01	724.0	7.6515817E-01	788.0	1.0000000E+00
619.0	6.6734263E-02	661.0	1.1118554E-01	725.0	7.8082167E-01	789.0	1.0000000E+00
620.0	6.7014346E-02	662.0	1.1279461E-01	726.0	7.9541525E-01	790.0	1.0000000E+00
621.0	6.7233283E-02	663.0	1.1562076E-01	727.0	8.1000544E-01	791.0	1.0000000E+00
622.0	6.7532949E-02	664.0	1.1853329E-01	728.0	8.2415057E-01	792.0	1.0000000E+00
623.0	6.7833331E-02	665.0	1.2171871E-01	729.0	8.3731616E-01	793.0	1.0000000E+00
624.0	6.8132463E-02	666.0	1.2511374E-01	730.0	8.5036939E-01	794.0	1.0000000E+00
625.0	6.8521463E-02	667.0	1.2945523E-01	731.0	8.6338647E-01	795.0	1.0000000E+00
626.0	6.8831469E-02	668.0	1.3203042E-01	732.0	8.7562301E-01	796.0	1.0000000E+00
627.0	6.9263709E-02	669.0	1.3538647E-01	733.0	8.8717443E-01	797.0	1.0000000E+00
628.0	6.9559463E-02	670.0	1.3933087E-01	734.0	8.9791619E-01	798.0	1.0000000E+00
629.0	7.0110089E-02	671.0	1.4407127E-01	735.0	9.0813412E-01	799.0	1.0000000E+00
630.0	7.0537011E-02	672.0	1.4846546E-01	736.0	9.1771358E-01	800.0	1.0000000E+00
631.0	7.1041727E-02	673.0	1.5307140E-01	737.0	9.2666461E-01	801.0	1.0000000E+00
632.0	7.1535515E-02	674.0	1.5793717E-01	738.0	9.3497197E-01	802.0	1.0000000E+00
633.0	7.2110036E-02	675.0	1.6235097E-01	739.0	9.4254516E-01	803.0	1.0000000E+00
634.0	7.2678334E-02	676.0	1.6824112E-01	740.0	9.4969330E-01	804.0	1.0000000E+00
635.0	7.3291344E-02	677.0	1.7377598E-01	741.0	9.5612098E-01	805.0	1.0000000E+00
636.0	7.3940393E-02	678.0	1.7956401E-01	742.0	9.6172799E-01	806.0	1.0000000E+00
637.0	7.4623006E-02	679.0	1.8561369E-01	743.0	9.6724395E-01	807.0	1.0000000E+00
638.0	7.5356115E-02	680.0	1.9133344E-01	744.0	9.7196805E-01	808.0	1.0000000E+00
639.0	7.6127537E-02	681.0	1.9853173E-01	745.0	9.7617342E-01	809.0	1.0000000E+00
640.0	7.6944028E-02	682.0	2.0541691E-01	746.0	9.7990674E-01	810.0	1.0000000E+00
641.0	7.7818239E-02	683.0	2.1259724E-01	747.0	9.8315266E-01	811.0	1.0000000E+00
		684.0	2.2033073E-01	748.0	9.8589326E-01	812.0	1.0000000E+00
		685.0	2.2737544E-01	749.0	9.8844743E-01	813.0	1.0000000E+00
		686.0	2.3598884E-01	750.0	9.9055033E-01	814.0	1.0000000E+00
		687.0	2.4442327E-01	751.0	9.9233689E-01	815.0	1.0000000E+00
		688.0	2.5320668E-01	752.0	9.9384124E-01	816.0	1.0000000E+00
		689.0	2.6231254E-01	753.0	9.9509628E-01	817.0	1.0000000E+00
		690.0	2.7176084E-01	754.0	9.9613633E-01	818.0	1.0000000E+00
		691.0	2.8157795E-01	755.0	9.9698166E-01	819.0	1.0000000E+00
		692.0	2.9174160E-01	756.0	9.9766950E-01	820.0	1.0000000E+00
		693.0	3.0226475E-01	757.0	9.9821860E-01	821.0	1.0000000E+00
		694.0	3.1315052E-01	758.0	9.9865427E-01	822.0	1.0000000E+00
		695.0	3.2440113E-01	759.0	9.9898531E-01	823.0	1.0000000E+00
		696.0	3.3601775E-01	760.0	9.9923906E-01	824.0	1.0000000E+00
		697.0	3.4800044E-01	761.0	9.9946049E-01	825.0	1.0000000E+00
		698.0	3.6034804E-01	762.0	9.9961233E-01	826.0	1.0000000E+00
		699.0	3.7305085E-01	763.0	9.9972524E-01	827.0	1.0000000E+00
		700.0	3.8612569E-01	764.0	9.9981803E-01	828.0	1.0000000E+00
		701.0	3.9954341E-01	765.0	9.9986785E-01	829.0	1.0000000E+00
		702.0	4.1331626E-01	766.0	9.9991042E-01	830.0	1.0000000E+00
		703.0	4.2742159E-01	767.0	9.9994124E-01	831.0	1.0000000E+00
		704.0	4.4185359E-01	768.0	9.9996679E-01	832.0	1.0000000E+00
		705.0	4.5660010E-01	769.0	9.9997472E-01	833.0	1.0000000E+00

ANNEXE III

CALCUL DES ENERGIES D'ACTIVATION

De l'équation de relâchement

$$dN = \nu \, (N_o - N) \exp \left(- \frac{E}{kT} \right) dT$$

on tire :

$$E = - \left| kT . \mathrm{Log} \left(\frac{dN}{dT} . \frac{1}{\nu \, (N_o - N)} \right) \right|$$

Les valeurs de E utilisées pour tracer les courbes Fig.39 sont les suivantes :

Température °K	Gaine 522 T1 bis	Gaine 309 T3	Gaine 784 T3
470	1,61	1,63	1,63
519	1,74	1,77	1,77
568	1,88	1,91	1,90
616	1,99	2,03	2,05
664	2,09	2,14	2,16
711	2,19	2,16	2,23
758	2,30	2,21	2,32
805	2,42	2,25	2,36
852	2,54	2,39	2,42
898	-	2,58	2,56
946	-	-	2,70

ANNEXE IV

ESTIMATION DE LA "PÉRIODE DE MÉMOIRE" DE LA TEMPÉRATURE SOUS IRRADIATION

Evaluons la "période de mémoire" définie comme étant le temps nécessaire au déplacement de la moitié des atomes du réseau par le flux de fragments de fission, dans le cas d'un élément combustible de l'irradiation de longue durée (c.f. IV.6) ainsi caractérisé :

- diamètre du combustible : 0,93 cm
- diamètre interne de la gaine : 0,95 cm.

Sachant que l'énergie dissipée par la fission d'un atome d'uranium 235 est de $3{,}2.10^{-11}$ Joules |29| on calcule le nombre de fission par seconde qui se

produisent dans un centimètre de ce combustible, soit pour une puissance linéique de 1 W/cm :

$$N = \frac{1}{3{,}2.10^{-11}} = 3{,}12.10^{10} \text{ fis.cm}^{-1}.\text{s}^{-1}$$

Mais seuls les fissions se produisant à la périphérie du combustible fournissent des fragments de fission susceptibles d'atteindre la gaine. L'épaisseur de cette "couche émettrice" est égale au parcours des fragments de fission dans l'UO_2 soit environ 9µ.

Le nombre de fragments de fission N' formés dans cette couche est :

$$N' = 2\ N \frac{v}{V} = 2{,}2.10^{8} \text{ FF}$$

2 étant le facteur de bipartition à la fission.
v le volume de la couche émettrice soit ici $v = 2{,}5.10^{-3}$ cm^3
V le volume du cylindre d'UO_2 de longueur 1 cm, soit ici 0,7 cm^3.

Le rapport v/V est donc égal à $3{,}7.10^{-3}$ dans le cas du combustible considéré.

Statistiquement la proportion des fragments de fission qui sortent d'une couche de combustible d'épaisseur égale à leur parcours est 0,5. Mais les fragments de fission se répartissent également de chaque côté de la couche où ils sont formés, soit un nouveau facteur 0,5. Par conséquent, la proportion des fragments de fission qui sortent de la couche émettrice du côté de la gaine est de : 0,5 x 0,5 = 0,25.

Ainsi le nombre de fragments de fission implantés dans la gaine est :

$$N'' = 0{,}25\ N' = 5{,}6.10^{7} \text{ FF}$$

L'énergie cédée au réseau du zircaloy par les fragments de fission est de : | 28 |

2,5 MeV pour les FF du groupe léger (FF_ℓ)
4,1 MeV pour les FF du groupe lourd (FF_L)

Appliquons la formule de KINCHIN et PEASE |31| pour calculer le nombre de déplacements atomiques d à partir de l'énergie cédée au réseau E_p :

$$d = \frac{E_p}{2\,E_d}$$

En prenant E_d = 25 eV, nous trouvons :

pour les FF_ℓ : d_ℓ = 5.10^4 déplacements/FF_ℓ
pour les FF_L : d_L = $8{,}2.10^4$ déplacements/FF_L.

Soit un nombre moyen de déplacements atomiques provoqués par un F.F. "moyen" :

$$d = \frac{(5 + 8{,}2)\ .\ 10^4}{2} = 6{,}6.10^4 \text{ déplacements/FF}$$

Nous venons de voir que le nombre de FF implantés dans la gaine est N" = $5{,}6.10^7$ FF.

Nous pouvons maintenant trouver le nombre de déplacements δ produits par centimètre de gaine dans la couche réceptrice de la gaine :

$$\delta = 6{,}6.10^4 \times 5{,}6.10^7 = 3{,}7.10^{12} \text{ déplacements/seconde.}$$

Le nombre de déplacements étant proportionnel au flux de FF et par conséquent à la puissance, dans le cas d'une puissance linéïque PL le nombre de déplacements sera $\delta PL = 3{,}7.10^{12} PL$.

Pour calculer le nombre de déplacements par atome et par seconde ($dpa.s^{-1}$) dans cette couche, il faut rapporter le nombre de déplacements par seconde au nombre M d' atomes de zirconium dans la couche :

$$M = \frac{2{,}5.10^{-3} \times 6{,}5 \times 6{,}02.10^{23}}{91} = 1{,}1.10^{20} \text{ atomes}$$

densité du Zy = 6,5
masse atomique du Zr = 91.

Le nombre de dpa.s^{-1} dans cette couche est égal à :

$$D = \frac{\delta}{M} = \frac{3,7.10^{12}}{1,1.10^{20}} = 3,4.10^{-8} \text{ dpa.s}^{-1}$$

La période de mémoire t étant définie comme le temps nécessaire au déplacement de 50% des atomes du réseau par les FF, on peut écrire :

$$t = \frac{0,5}{D \cdot PL}$$

Pratiquement la formule donnant t en heures est :

$$t_h = \frac{4085}{PL}$$

Effet de la couche de zircone

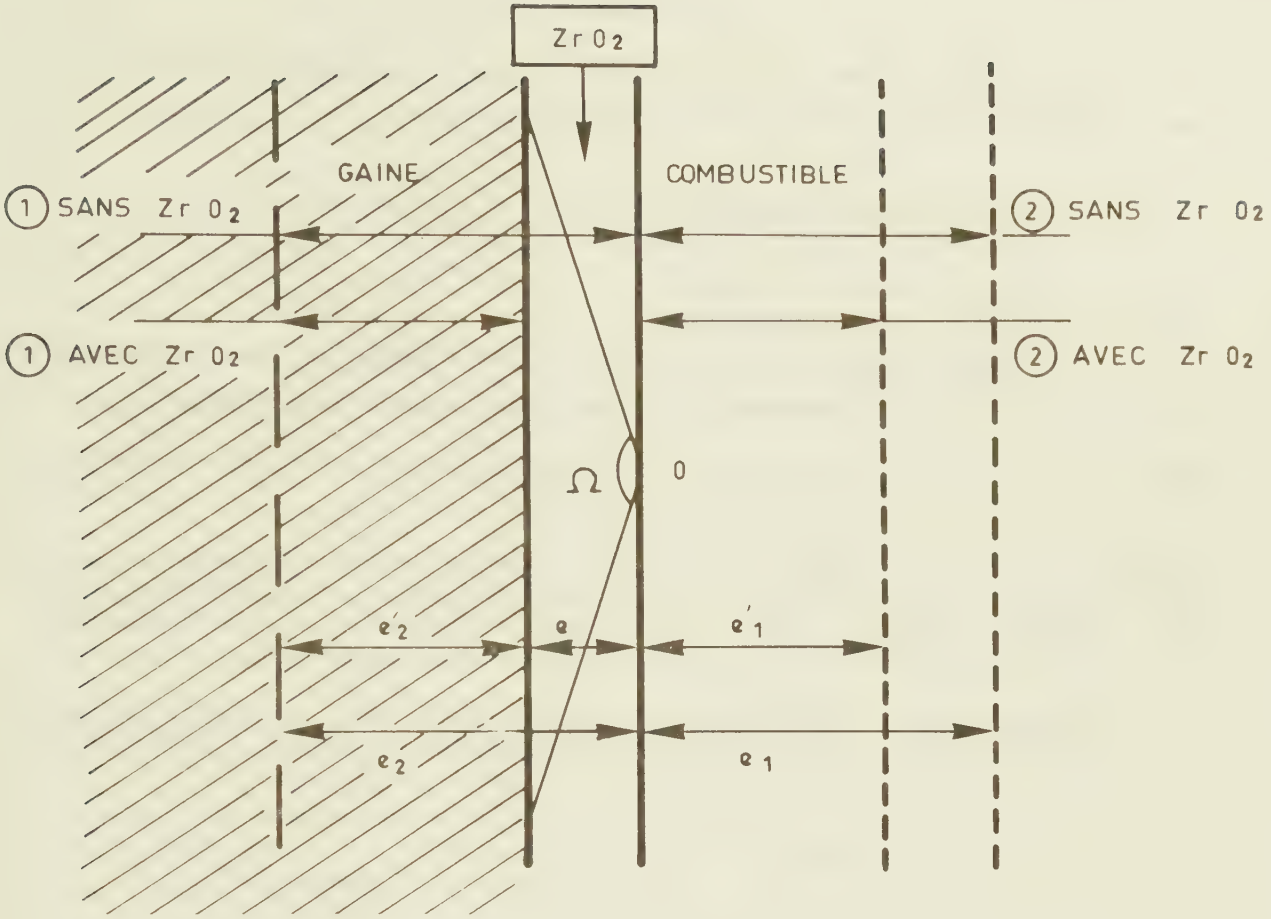
Le freinage des fragments de fission par la couche de zircone qui se développe au cours de l'irradiation produit trois effets sur l'implantation de ceux-ci dans la gaine :

- il réduit le nombre de fragments parvenant à la gaine,
- il diminue l'épaisseur de la couche de gaine bombardée,
- il diminue l'épaisseur de la couche de combustible d'où sont issus les fragments qui parviennent à la gaine.

Cette triple action est représentée sur le schéma suivant, dans lequel :

- e_1 et e_2 sont respectivement les épaisseurs des couches émettrices et réceptrices de produits de fission avant formation de la zircone.

- e'_1 et e'_2 ces mêmes couches en présence de la couche de zircone d'épaisseur e, formée par oxydation du zirconium.



Les parcours moyens des fragments de fission sont respectivement de 8,5 µ, 10 µ et 9 µ dans le combustible, la gaine et la zircone [28]. On admettra qu'ils ont des parcours identiques dans ces trois matériaux soit P = 9 µ, les épaisseurs des couches 1 et 2 deviennent :

$$e'_1 = e_1 - e$$

$$e'_2 = e_2 - e$$

où e est l'épaisseur de la couche de zirconium oxydé.

Le nombre de déplacements δ' dans ce cas est alors :

$$\delta' = \delta \frac{e'_1}{e_1} = \delta \left(1 - \frac{e}{9}\right)$$

Le nombre d'atomes M constituant la couche de gaine bombardée devient :

$$M' = M \frac{e'_2}{e_2} = M \left(1 - \frac{e}{9}\right)$$

Seuls les fragments de fission émis dans l'angle solide Ω traverseront la couche de zircone et contribueront à créer des déplacements atomiques sur la gaine :

$$\delta'' = \delta' \frac{\Omega}{2\pi} = \delta' \left(1 - \frac{e}{9}\right)$$

(avec e en microns).

L'effet global sur le nombre de déplacement par atome δ/M est donc :

$$\frac{\delta''}{M'} = \frac{\delta' \left(1 - \frac{e}{9}\right)}{M'} = \frac{\delta}{M} \left(1 - \frac{e}{9}\right)$$

La période de mémoire en présence d'une couche de zircone d'épaisseur e, devient :

$$t_s = \frac{0,5}{\frac{\delta}{M} \left(1 - \frac{e}{9}\right) PL}$$

Soit pratiquement :

$$t_{heures} = \frac{4085}{\left(1 - \frac{e}{9}\right) PL}$$

A l'aide de cette formule nous avons tracé un abaque qui donne la période t pour des couches de zircone d'épaisseur inférieure à 8 microns dans la gamme de puissance 10 à 800 $W.cm^{-1}$. (Fig.40).

ANNEXE V

PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DE L'ACCELERATEUR SAMES

(Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses)

Cet accélérateur comprend essentiellement :

- Un générateur électrostatique à tambour tournant (système FELICI) délivrant 600 KV.

- Une électrode Haute-Tension comprenant une source d'ions Haute-Fréquence du type TONEMANN avec fenêtre de focalisation. Cette électrode est supportée par une colonne isolante à l'intérieur de laquelle passent les arbres d'entraînement de la télécommande.

- Un tube accélérateur à trois étages, la répartition du potentiel étant assurée par un diviseur de tension à résistances.

- Un groupe de pompage constitué par :

  - une pompe à palette,
  - une pompe à diffusion d'huile,
  - un baffle refroidi à l'azote liquide.

Pour les implantations par des ions krypton 85, les caractéristiques sont les suivantes :

- A leur sortie du tube accélérateur les ions sont déviés magnétiquement dans une voie inclinée de 13° et dirigés sur le dispositif d'irradiation qui se compose :

  - d'une cible (pastille de zircaloy Ø 8mm, ép.: 1mm,
  - d'un four permettant d'obtenir 700°C,
  - d'une enceinte dans laquelle le four et la cible sont montés, la pression qui règne dans cette enceinte est de 10^{-8} Torr, elle est entretenue par une pompe turbomoléculaire de 600ℓ/sec. Cette pression est maintenue par rapport à la pression amont (accélérateur) qui est de 5.10^{-6} Torr grâce à un diaphragme différentiel.

- Les courants d'ions pouvant être obtenus varient selon le type d'ions :

  - 1 à 2.10^{-7} A pour les ions métalliques,
  - 1 à 2.10^{-6} A pour les ions gazeux.

LISTE DES FIGURES

1 - Schéma de principe des réacteurs à eau pressurisée.
2 - Loi de probabilité des différentes fissions de l'U-235.
3 - Profil de température dans les éléments combustibles.
4 - Variation de la conductibilité thermique de l'UO_2.
5 - Intégrale de conductibilité de l'UO_2.
6 - Macrographie et micrographies d'un élément combustible.
7 - Conductivité thermique du Zy 2 et de ZrO_2
8 - Ecart entre températures mesurées et températures réelles.
9 - Four de recuit.
10 - Schéma de principe de l'installation.
11 - Enceinte porte-échantillons montrant le thermocouple de mesure.
12 - Spectromètre à scintillation.
13 - Schéma de principe du spectromètre.
14 - Vue partielle de la chaine de comptage.
15 - Rendement du scintillateur.
16 - Spectre γ des produits de fission relâchés par une gaine.
17 - Spectre β du krypton 85 pur et fenêtre de comptage.
18 - Elimination chimique des césiums par le D2 HPA.
19 - Spectre γ des produits de fission restant dans le gaz porteur après barbottage dans le D2 HPA.
20 - Spectre γ des produits de fission retenus par le D2 HPA.
21 - Influence de la décontamination.
22 - Courbe type de relâchement du krypton 85.
23 - Courbe de double-recuit d'un échantillon.
24 - Courbe de correction de la température échantillon.
25 - Plan de coupe et résultats du crayon n° 10 C4.
26 - Essai de recuits successifs.
27 - Courbe de dégagement du krypton 85 de la pastille n° 4.

28 - Analyse du gaz porteur du recuit de la pastille n° 4.
29 - Comparaison entre températures mesurées et estimées.
30 - Montée en puissance du crayon ELO 19.
31 - Répartition longitudinale de la température de l'élément référence.
32 - Profil thermique commun aux six crayons de l'assemblage.
33 - Accrochage et défaut de combustible dans la gaine.
34 - Structure de la gaine de l'élément localement surchauffé.
35 - Plan de coupe et résultats du crayon D183 C3.
36 - Rétention du krypton dans des pièges de profondeurs diverses.
37 - Boucles dans du zircaloy irradié par des neutrons rapides.
38 - Comparaison entre courbe calculée et valeurs expérimentales.
39 - Spectre d'énergie d'activation.
40 - Aspect de la couche de zircone à l'intérieur de la gaine.
41 - Période de mémorisation sous irradiation.
42 - Conteneur d'irradiation Détroit.
43 - Boîtier des témoins de température.
44 - Courbe de relâchement du krypton 85 de la gaine du tronçon n° 2 de l'irradiation Détroit.

Vu et approuvé

PARIS, le 6 juillet 1976

Le Président de l'Université